

## Numerische Simulationen von Abfallgebinden aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

Stephan Schneider





Forschungszentrum Jülich GmbH  
Institut für Energie- und Klimaforschung  
Nukleare Entsorgung und Reaktorsicherheit (IEK-6)

# **Numerische Simulationen von Abfallgebinden aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen**

Stephan Schneider

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 233

---

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-998-0



Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.  
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der  
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten  
sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Herausgeber  
und Vertrieb: Forschungszentrum Jülich GmbH  
Zentralbibliothek, Verlag  
52425 Jülich  
Tel.: +49 2461 61-5368  
Fax: +49 2461 61-6103  
E-Mail: [zb-publikation@fz-juelich.de](mailto:zb-publikation@fz-juelich.de)  
[www.fz-juelich.de/zb](http://www.fz-juelich.de/zb)

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2014

Schriften des Forschungszentrums Jülich  
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment, Band / Volume 233

D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2014)

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-998-0

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server  
unter [www.fz-juelich.de/zb/juwel](http://www.fz-juelich.de/zb/juwel)

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder  
in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder  
unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

**Für Helen**



# Inhaltsverzeichnis

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| <b>1</b> | <b>Einleitung</b>   | <b>9</b>  |
| 1.1      | Kernbrennstoffkreislauf . . . . .                                       | 9         |
| 1.2      | Wiederaufarbeitung . . . . .  | 13        |
| 1.2.1    | Konditionierungsverfahren . . . . .                                     | 15        |
| 1.2.2    | Abfallströme aus der Wiederaufarbeitung . . . . .                       | 18        |
| 1.3      | Qualitätskontrolle und Charakterisierung radioaktiver Abfälle . . . . . | 19        |
| 1.4      | Zielsetzung für ein Prüfprogramm . . . . .                              | 20        |
| <b>2</b> | <b>Reaktorphysikalische Grundlagen</b>                                  | <b>23</b> |
| 2.1      | Funktionsweise eines Leichtwasserreaktors . . . . .                     | 23        |
| 2.2      | Brennstoffparameter . . . . .   | 26        |
| 2.3      | Typisches Radionuklidinventar abgebrannter Kernbrennstoffe . . . . .    | 30        |
| <b>3</b> | <b>Konzept eines Prüfprogramms</b>                                      | <b>35</b> |
| 3.1      | Zielsetzung eines unabhängigen Prüfprogramms . . . . .                  | 35        |
| 3.2      | Verwendete Simulationsprogramme . . . . .                               | 38        |
| 3.2.1    | Abbrandrechnung . . . . .   | 38        |
| 3.2.1.1  | Erzeugung der problemabhängigen Wirkungsquerschnitte . . . . .          | 39        |
| 3.2.1.2  | Methode der Neutronenflussberechnung . . . . .                          | 41        |
| 3.2.2    | Berechnungsverfahren von ORIGEN-S . . . . .                             | 45        |
| 3.2.3    | Modellierung des Teilchentransports . . . . .                           | 48        |
| 3.3      | Software-Entwicklung . . . . .  | 54        |
| 3.4      | Funktionalität des Kopplungsprogramms . . . . .                         | 64        |
| 3.4.1    | Berechnung der thermischen Leistung . . . . .                           | 64        |
| 3.4.2    | Ermittlung einer Korrelationsfunktion . . . . .                         | 65        |
| 3.4.3    | Berechnung der Radiotoxizität . . . . .                                 | 67        |
| 3.4.4    | Modellierung einer hypothetischen Wiederaufarbeitungsanlage . . . . .   | 68        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 3.5      | Begleitende Software-Entwicklung . . . . .                   | 74         |
| 3.6      | Generische Modellierung von Abfallströmen . . . . .          | 75         |
| <b>4</b> | <b>Cluster-Computing</b>                                     | <b>79</b>  |
| 4.1      | Einführung Cluster-Computing . . . . .                       | 80         |
| 4.2      | Logische Ebenen des Clusters . . . . .                       | 81         |
| 4.2.1    | Hardware-Ebene . . . . .                                     | 82         |
| 4.2.2    | Aufbau und Funktion der System-Ebene . . . . .               | 85         |
| 4.2.3    | Funktion der Cluster-Ebene . . . . .                         | 87         |
| 4.2.4    | Anwendungsebene . . . . .                                    | 91         |
| 4.3      | Leistung und Effizienz . . . . .                             | 92         |
| 4.4      | Statistiken zur Clusternutzung . . . . .                     | 97         |
| <b>5</b> | <b>Validierung der Simulationsprogramme</b>                  | <b>99</b>  |
| 5.1      | Validierung der Abbrandrechnung . . . . .                    | 99         |
| 5.1.1    | Synthetischer Benchmark - NEA-6227 . . . . .                 | 100        |
| 5.1.2    | Validierung mittlere Abbrände . . . . .                      | 106        |
| 5.1.3    | Validierung Hochabbrand . . . . .                            | 109        |
| 5.2      | Validierung des Teilchentransports . . . . .                 | 119        |
| 5.3      | Diskussion der Validierungsrechnungen . . . . .              | 125        |
| <b>6</b> | <b>Ermittlung der Isotopenkorrelationen</b>                  | <b>127</b> |
| 6.1      | Darstellung der verwendeten Brennelementmodelle . . . . .    | 129        |
| 6.2      | Einfluss der Reaktorparameter . . . . .                      | 130        |
| 6.3      | Abbrand und Abklingzeit . . . . .                            | 134        |
| 6.4      | Actinoide und Spaltprodukte . . . . .                        | 143        |
| 6.5      | Bewertung der Korrelationsmethodik . . . . .                 | 147        |
| <b>7</b> | <b>Untersuchung von hochdruckkompaktierten Abfallströmen</b> | <b>149</b> |
| 7.1      | Modellbasierte Ableitung der Eigenschaften . . . . .         | 149        |
| 7.2      | Qualitätsmerkmale der Abfallgebinde . . . . .                | 155        |
| 7.2.1    | Neutronen- und Photonenspektren . . . . .                    | 156        |
| 7.2.2    | Kritikalitätssicherheit . . . . .                            | 164        |
| 7.2.3    | Nuklidinventar . . . . .                                     | 166        |
| <b>8</b> | <b>Mögliche Erweiterung der BMU-Freigabe</b>                 | <b>169</b> |

|          |   |            |
|----------|---|------------|
| 8.1      | Hochabbrand . . . . .                           | 170        |
| 8.2      | Mischoxidbrennstoffe . . . . .                  | 172        |
| 8.3      | Brennstoffhülsen aus Niob-Legierungen . . . . . | 174        |
| 8.4      | Folgerung . . . . .                             | 175        |
| <b>9</b> | <b>Zusammenfassung und Ausblick</b>             | <b>177</b> |
|          | <b>Abbildungsverzeichnis</b>                    | <b>181</b> |
|          | <b>Tabellenverzeichnis</b>                      | <b>185</b> |
|          | <b>Zusammenfassung</b>                          | <b>197</b> |
|          | <b>Abstract</b>                                 | <b>199</b> |
|          | <b>Danksagung</b>                               | <b>201</b> |



# 1 Einleitung

Der Einsatz von Kernbrennstoffen für die Energieerzeugung bewirkt, dass radioaktive Abfallstoffe entstehen. Diese Abfälle müssen in einer sicheren Weise von der Biosphäre getrennt bleiben, um eine schädigende Wirkung auf die Bevölkerung und Umwelt zu vermeiden. Im Kernbrennstoffkreislauf, welcher in Abschnitt 1.1 dargestellt ist, fallen an allen Stationen radioaktive Abfälle an, die in einer geeigneten Weise verarbeitet und konditioniert werden müssen. Die hierbei erzeugten Abfallgebinde müssen von unabhängiger Seite begutachtet werden, um ihre Eignung für den Transport, Zwischenlagerung und Endlagerung sicherzustellen. Eine unabhängige Produktkontrolle ist eine wichtige Komponente eines wirksamen Abfall-Management-Systems. Der Prüfumfang, die Prüftätigkeiten sowie die Charakterisierung der Abfälle richten sich nach den Akzeptanzkriterien für den jeweiligen Abfallstrom. Ziel dieser Arbeit ist die Entwicklung eines Softwaresystems, welches den Gutachtern von radioaktiven Abfällen gestattet, mittels Szenarioanalysen Erwartungswerte für die jeweiligen Abfallströme zu ermitteln. Die Anwendung numerischer Simulationsprogramme versetzt die Gutachter in die Lage, Prognosen der Abfalleigenschaften aufzustellen und somit die notwendigen Dokumentationsprüfungen im Vorfeld zu entwickeln. Die numerischen Simulationen werden in dieser Arbeit hauptsächlich in Hinblick auf die Abfallströme der Wiederaufarbeitung durchgeführt. Die entwickelte Softwareumgebung ist jedoch nicht auf diesen Anwendungsfall begrenzt. In den folgenden Abschnitten werden die Randbedingungen und Einsatzgebiete umrissen, bevor im Hauptteil der Arbeit die Entwicklung der Softwareumgebung besprochen wird.

## 1.1 Kernbrennstoffkreislauf

Alle Verarbeitungsschritte des Urans als Brennstoff für die Energieerzeugung, von der Gewinnung im Bergbau bis zur Endlagerung von radioaktiven Abfallstoffen, wird als Kernbrennstoffkreislauf bezeichnet. Abbildung 1.1 stellt schematisch die Einzelschritte des Kreis-





Im Folgenden werden die Einzelschritte des Kernbrennstoffkreislaufs kurz dargestellt. Sowohl der "once-through"-Zyklus als auch der Kernbrennstoffkreislauf mit Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen beginnen bei dem Uran-Bergbau. In über- oder unterirdischen Minenanlagen wird uranhaltiges Gestein abgebaut. Durch den Prozess des Millings wird das Uran aus dem Gestein extrahiert und in das Mischoxid  $\text{U}_3\text{O}_8$ , bzw. Ammoniumdiuranat  $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ , überführt. Das Uranoxid besitzt neben dem hauptsächlichen  $^{238}\text{U}$  einen Anteil von nur 0,72 Atom-% des thermisch spaltbaren Uranisotops  $^{235}\text{U}$ . Um das Uran als Brennstoff in einem Kernreaktor zu verwenden, muss der Anteil an spaltbaren  $^{235}\text{U}$  gesteigert werden. Vor der Anreicherung des Brennstoffs wird das Urankonzentrat vorher von anhaftenden Verunreinigungen getrennt. Im Konversionsschritt wird durch nass- oder trocken-chemische Verfahren das Uran weiter aufbereitet. So wird beispielsweise in einem nass-chemischen Prozess das Urankonzentrat in Salpetersäure aufgelöst und mittels Flüssigextraktionen von den Verunreinigungen getrennt. Im Anschluss wird es in einer Ammoniaklösung ausgeschieden, was zu einem reinen Ammoniumdiuranat führt. Dieses Zwischenprodukt wird getrocknet und kalziniert, um  $\text{UO}_3$  zu erhalten, welches in einer reduzierenden Umgebung von Wasserstoff und Stickstoff zum Urandioxid reduziert wird. Die nächsten Arbeitsschritte überführen das Urandioxid in das Uranhexafluorid, indem erst das Urandioxid zusammen mit Fluorwasserstoff erhitzt wird, wodurch sich  $\text{UF}_4$  bildet. Im Anschluss wird  $\text{UF}_4$  zusammen mit Fluor erhitzt um zum Endprodukt  $\text{UF}_6$  zu gelangen. Das  $\text{UF}_6$  wird in fester Form der Anreicherung zugeführt (Shultis u. Richard, 2007).

Der Sublimationspunkt von  $\text{UF}_6$  beträgt bei Normaldruck 56,6 °C, durch Erwärmung geht das Uranhexafluorid direkt in die Gasphase über. Die Isotopentrennung durch Gaszentrifugen ist die derzeit verbreitetste Technik zur Anreicherung von Kernbrennstoffen für Leichtwasserreaktoren (Pouris, 1986). Durch die unterschiedlichen Massen der  $^{235}\text{UF}_6$ - bzw.  $^{238}\text{UF}_6$ -Moleküle lassen sich in Gaszentrifugen diese beiden Spezies aufgrund der unterschiedlichen Trägheit trennen. Die Trennleistung hängt von der Konstruktion der Zentrifugen ab. Um die Trennleistung der Anlage zu erhöhen, werden viele dieser Gaszentrifugen kaskadiert. Der angereicherte Anteil durchläuft mehrere Stufen, um die geforderte Anreicherung zu erhalten. Ebenso durchlaufen die abgereicherten "Tails" weitere Zentrifugen, um die Effizienz der Anlage zu erhöhen und das abgetrennte  $^{235}\text{UF}_6$  wieder in den Anreicherungsprozess einzuspeisen. Durch ein Verbindungsnetz sind die unterschiedlichen Prozessstufen miteinander verbunden. Die typische Anreicherung für Leichtwasserreaktoren liegt zwischen 3,5 % bis 5,0 % und gilt daher als schwach angereichertes Uran. Forschungsreaktoren, welche einen deutlich höheren Neutronenfluss benötigen, werden mit

hoch-angereichertem Uran betrieben, der Anreicherungsgrad kann hierbei zwischen 80,0 % bis 90,0 %  $^{235}\text{U}$  betragen (Fernandes u. a., 2003).

In der Brennstoffertigung wird aus dem angereicherten Uran in einem Sinterprozess das keramische Urandioxid hergestellt. Der Brennstoff wird in Form von Pellets erzeugt. Die theoretische Dichte von Urandioxid liegt bei 10,96 g. Diese Pellets werden vor der Herstellung der Brennelemente in Brennstäbe eingefüllt. Jedes Brennelement beinhaltet bis zu 300 einzelne Brennstäbe mit einer aktiven Länge von bis zu 4,8 m<sup>1</sup>.

Der Einsatz von Urandioxid als Brennstoff eines Leichtwasserreaktors ist Gegenstand der Beschreibung in Kapitel 2. Nach der Entladung der abgebrannten Brennelemente aus dem Reaktorkern weisen diese eine hohe Neutronen- und Gammadosisleistung auf. Die Brennelemente verbleiben im Lagerbecken, bis die Radioaktivität so weit abgeklungen ist, um in einem trockenen Lager- und Transportbehälter verwahrt zu werden, um etwa der Wiederaufarbeitung oder einer Zwischenlagerung für eine direkte Endlagerung zugeführt zu werden.

Für die sichere und langfristige Lagerung von abgebrannten Kernbrennstoffen stellt die Handhabung und der Umgang mit gebrauchten Kernbrennelementen eine wesentliche Herausforderung dar. Bei allen operativen Schritten im Kernbrennstoffkreislauf entstehen durch den Betrieb, Dekontamination oder Rückbauaktivitäten zusätzliche schwach und mittelaktive Abfälle, welche ebenfalls abgekoppelt vor der Biosphäre gelagert werden müssen. Der Hauptanteil jedoch, der im Kernbrennstoffkreislauf vorhandenen Radiotoxizität, entstammt den abgebrannten Kernbrennstoffen. Radiotoxizität als Größe gibt Aufschluss über das Schädigungspotential bei Bestrahlung oder Inkorporation von Radionukliden in den Organismus. Für die Endlagerung in Deutschland wurde der Konsens getroffen, dass alle leicht-, mittel- und hochaktiven Abfälle in tiefen geologischen Formationen endzulagern sind. Für die leicht- und mittelaktiven Abfälle ist bereits ein Standort gefunden: das ehemalige Eisenerz-Bergwerk Konrad in der Nähe von Salzgitter wird zukünftig als Endlager für nichtwärmeerzeugende leicht- und mittelradioaktive Abfallgebinde eingesetzt (Brennecke, 1994). Für ein Endlager von hochradioaktiven Abfällen ist bisher in Deutschland noch keine Standortwahl getroffen worden (Witherspoon u. Bodvarsson, 2006).

Im Rahmen dieser Arbeit wird das Verhalten von Kernbrennstoffen während des Reaktorbetriebs und der Wiederaufarbeitung analysiert. Die untersuchten Eigenschaften werden

---

<sup>1</sup>Angaben bezogen auf ein Siemens Konvoi Brennelement, vgl. (Nuc, 2004)

in Hinblick auf eine zukünftige Endlagerfähigkeit der Abfälle besprochen.

## 1.2 Wiederaufarbeitung

Die Wiederaufarbeitung basiert auf der chemischen Behandlung und Auftrennung der abgebrannten Kernbrennstoffe. Hauptziel der klassischen Wiederaufarbeitung ist die Rückgewinnung von Wertstoffen, hauptsächlich Uran und Plutonium, aus der Brennstoffmatrix. Eine vollständige oder teilweise Wiederaufarbeitung erscheint heutzutage auch sinnvoll unter dem Aspekt, der gesteigerten Langzeitsicherheit durch Reduktion der zeitabhängigen Radiotoxizität und der radio-ökologischen Nachhaltigkeit. Die Entwicklung von Wiederaufarbeitungstechnologien datiert zurück bis in das Manhattan-Projekt Mitte der 1940er Jahre (Andrews, 2009). Die Wiederaufarbeitung dient heute vornehmlich der zivilen und nachhaltigen Nutzung der Kernenergie beziehungsweise radiologischer Wertstoffe. Die zivile Wiederaufarbeitung wurde auch vor dem Hintergrund der Endlichkeit und effizienten Nutzung der natürlichen Uran-Ressourcen und somit einer Verteuerung des Urans als Rohstoff entwickelt, vgl. (Baumgärtner, 1969). Seit den 1940er Jahren wurden die Techniken der Wiederaufarbeitung kontinuierlich weiterentwickelt und verbessert. Heute sind viele Methoden ausgereift für den großindustriellen Einsatz.

Laut der "Nuclear Fuel Cycle Information" (INFCIS) Datenbank<sup>2</sup> sind derzeit drei kommerzielle Anlagen für die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen in Betrieb: La Hague mit einer maximalen Kapazität von 2.000 Tonnen Schwermetall im Jahr, Sellafield mit 2.400 Tonnen (MAGNOX + LWR) sowie die Wiederaufarbeitungsanlage im russischen Mayak. Es befinden sich momentan mehrere Anlagen im Bau oder nehmen ihren Betrieb auf, unter anderem die japanische Wiederaufarbeitungsanlage in Rokkasho, mit einem maximalen Durchsatz von 800 Tonnen pro Jahr, oder auch eine Prototyp-Anlage in der chinesischen Provinz Gansu.

Die Wiederaufarbeitungsanlagen in der Bundesrepublik Deutschland haben entweder ihren Betrieb bereits wieder eingestellt oder der Bau wurde gar nicht erst begonnen. Die Pilotwiederaufarbeitungsanlage in Karlsruhe war für etwa 20 Jahre in Betrieb.

Da die Bundesrepublik keine eigene Möglichkeit für die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mehr besitzt, wurde am 25. April 1990 ein Staatsvertrag (intergovernmentaler Notenaustausch) zwischen der Bundesrepublik und Frankreich unterzeichnet, welcher

---

<sup>2</sup>INFCIS-Webseite: <http://infcis.iaea.org> Stand : Juli 2014

die Wiederaufarbeitung von deutschen Brennelementen in Frankreich regelt. Vier Monate später folgte eine weitere ebensolche Vereinbarung mit dem Vereinigten Königreich, welche ebenfalls die Wiederaufarbeitung von deutschen Kernbrennstoffen in Sellafield vorsieht. Bis in das Jahr 2005 wurden laut dem Bundesamt für Strahlenschutz 6.670 Tonnen Schwermetall von abgebrannten Kernbrennstoffen an die im europäischen Ausland befindlichen Wiederaufarbeitungsanlagen geliefert. Durch eine Änderung des Atomgesetz im Jahre 2002 wurde juristisch festgelegt, dass ab dem 01. Juli 2005 keine weiteren Transporte mehr in die Wiederaufarbeitungsanlagen erlaubt sind, (vgl. AtG §9a, Abs. 1). Nach Angaben des Bundesamts für Strahlenschutz wurden nach La Hague bis 2005 insgesamt 5.379 Tonnen Schwermetall geliefert, weitere 851 Tonnen gingen an die Wiederaufarbeitungsanlage in Sellafield. In beiden Fällen sind entsprechende Mengen an radioaktiven Abfallgebinden wieder nach Deutschland zurückzuführen.

Ein weiterer wichtiger Aspekt ist, dass die Wiederaufarbeitung eine zentrale Rolle bei optimierten Kernbrennstoffkreisläufen spielt, wie bei dem Einsatz von Brutreaktoren und modernen Konzepten wie "Partitioning & Transmutation" (P&T) oder "Partitioning & Conditioning" (P&C), vgl. (Inoue u. a., 1991).

Als Schwerpunkttechnologie hat sich in den derzeit operativen Wiederaufarbeitungsanlagen die Extraktion mit Lösungsmitteln durchgesetzt. In den 1950er Jahren begann die Entwicklung des "Plutonium-Uranium Recovery by Extraction" (PUREX)-Prozess, siehe (Irish u. Reas, 1957). Die Brennelemente werden nach ihrer Anlieferung im ersten Schritt der Wiederaufarbeitung von ihren Endstücken getrennt und durch eine Stab- oder Bündelschere in ca. 5 cm lange Abschnitte zerlegt. Diese zerteilten Brennstababschnitte werden durch Salpetersäure ausgelaugt und somit die Brennstoffmatrix aufgelöst. Zurück bleiben die metallischen Reste der Brennstoffhüllen und Strukturmaterialien, die mechanisch von der Brennstofflösung getrennt werden. In einem mehrstufigen Prozess wird der Brennstofflösung das Lösungsmittel Tri-butyl-phosphat (TBP) zugegeben. Die Schwermetallnitrats mit Oxidationszahlen +4 und +6 bilden Komplexe zusammen mit TBP, welche sich von der übrigen Lösung als nicht mischbare Phase absetzen. Plutonium in der Oxidationsstufe +4 wird zusammen mit dem Uran abgetrennt, die Lanthanoide und Actinoide mit Oxidationsstufe +3 hingegen nicht. Dies bewirkt, dass der PUREX-Prozess effizient Uran und Plutonium von den übrigen Bestandteilen der Brennstofflösung extrahiert. In den weiteren Prozessschritten wird das Uran von Plutonium chemisch getrennt. Das zurückgewonnene Uran kann der Wiederanreicherung zugeführt werden während das Plutonium der Herstellung von Mischoxidbrennstoffen (MOX) dient (Irish u. Reas, 1957).

Die Separierung von Uran und Plutonium aus der Brennstofflösung bewirkt, dass als PUREX-Raffinat eine hochaktive Abfalllösung zurückbleibt, die für die Endlagerung in eine geeignete Abfallmatrix konditioniert werden muss. Das erzeugte Raffinat könnte jedoch auch durch moderne Extraktionsmethoden weiter verarbeitet werden, um beispielsweise die Minoren Actinoiden wie Americium, Curium und Neptunium, selektiv abzutrennen, vgl. (Vertes u. a., 2011). Die Methoden SANEX und DIAMEX sind bereits seit mehreren Jahren in Erprobung und liefern im Labormaßstab sehr gute Ergebnisse, vgl. (Madic u. a., 2007). Mittels dieser Methoden ließen sich die bisherigen Prozessketten der Wiederaufarbeitung erweitern, dies ist bis zum heutigen Zeitpunkt für kommerzielle Anlagen aber noch nicht geschehen (Agency, 2005).

### **1.2.1 Konditionierungsverfahren**

Die anfallenden Reststoffe aus der Wiederaufarbeitung müssen in eine endlagergeeignete und sichere langzeitstabile Matrix überführt werden, um ein endlagerfähiges Gebinde mit höherer Auslaugresistenz zu erhalten. Bei der Wiederaufarbeitung verbleiben nach dem Abtrennen von Uran und Plutonium die hochaktive Spaltproduktlösung, die mittelaktiven Strukturmaterialien der Brennelemente, technologische Abfälle z.B. Filtergehäuse, Rohrleitungen oder Ventile, Filterschlämme oder Waschflüssigkeiten sowie weitere Low-Level-Abfälle. Jede dieser Abfallsorten muss entsprechend seiner physikalischen und chemischen Eigenschaften endlagergerecht konditioniert werden.

Für die hochaktive Spaltproduktlösung wurden verschiedene Methoden für die Konditionierung erprobt. Großtechnisch hat sich weltweit die Verglasung der Abfälle durchgesetzt, soweit dies chemisch möglich ist. Diese Methode wird in allen kommerziell arbeitenden Wiederaufarbeitungsanlagen angewendet. Unterschiedliche Methoden für die Verglasung wurden über die letzten Jahrzehnte entwickelt. Die Verglasungseinrichtung in Marcoule (Atelier de Vitrification Marcoule, AVM) wurde 1978 in Betrieb genommen (Bonniaud u. a., 1980). Dieser zweistufige Prozess basiert darauf, dass im ersten Schritt die Spaltproduktlösung einen Kalzinator durchläuft, durch Eindampfung, Trocknung und Kalzination wird der flüchtige Bestandteil, im Wesentlichen sind dies Nitrosegase, Wasserdampf und Kohlendioxid, entfernt. Das Kalzinat fällt im zweiten Schritt zusammen mit einer Borosilikat-Glasfritte in einen metallischen Schmelzofen, welcher von außerhalb-liegenden Heizspulen induktiv erhitzt wird. Glasfritte und Kalzinat werden in einer Schmelze bei

Temperaturen zwischen 1.000 und 1.050 °C aufgeschmolzen und durchmischt, vgl. (Bonniaud u. a., 1980). Eine andere Verfahrenstechnik wurde mit der PAMELA-Anlage in Mol (Belgien) mit einem einstufigen Design verfolgt. Die Spaltproduktlösung gelangt direkt in den Schmelzofen und wird in dem oberen Bereich, der sogenannten Kaltzone, des Ofens kalziniert; somit ist kein externer Kalzinator notwendig (Wiese u. Démonic, 1992). Die Verglasungseinrichtung in Karlsruhe (VEK) basiert ebenfalls auf dem PAMELA-Verfahren, vgl. (Roth u. Weisenburger, 2000).

Eine Konditionierungsmethodik für die Strukturabfälle der Brennelemente wurde im zweiten Forschungsprogramm der Europäischen Union erarbeitet. An dieser Stelle sollen die vorgeschlagenen Methoden kurz vorgestellt und mit der derzeit gängigen Praxis verglichen werden.

Die Unterschiedliche Zusammensetzung der Strukturabfälle sowie die Variation des Abbrands und der Kühlzeit bewirkt, dass der Abfall wesentlich heterogener ist als im Vergleich zu einem verglasten hochaktiven Abfallstrom. Des Weiteren werden aus der Spaltproduktlösung repräsentative Proben genommen und die Radioaktivität nuklidspezifisch ermittelt. Die Proben dienen dazu die zu erwartenden Eigenschaften der Abfallgebinde zu bestimmen. Die Strukturmaterialien bestehen hauptsächlich aus Zirkonium-Legierungen, Inconel und Edelstahl. Anhaftende Brennstoffreste bewirken mit, dass auch diese Abfälle als wärmeentwickelnd einzustufen sind (Toubon u. a., 2003). Auch die geometrische Form bewirkt eine zusätzliche Heterogenität. Wie in Abschnitt 1.2 dargestellt ist, werden die Brennstäbe in ca. 5 cm lange Abschnitte zerlegt und von den Endstücken getrennt. Bei der Konditionierung müssen jedoch sowohl die Endstücke, als auch die Hülstenreste Beachtung finden. Durch die Heterogenität der Abfälle ist es deutlich aufwendiger für einen Abfallstrom repräsentative Proben der unterschiedlichen Materialien zu entnehmen um daraus die Eigenschaften der Abfallgebinde zu ermitteln.

Ein Vorschlag ist die Vorkompaktierung der Hülsten mittels Walzen, gefolgt von einem Einschluss in eine Betonmatrix, vgl. (Frotscher u. a., 1982). Diese Kompaktierung wird bereits für leicht- und mittelaktive Abfälle angewendet. Die hohen Strahlungspegel innerhalb des Abfallgebundes verursachen jedoch eine Radiolyse des Wassers und chloridhaltiger Salze, die in der Betonmatrix enthalten sind. Studien haben gezeigt, dass die Rückhaltefähigkeit von Radiolysegasen in Beton mit 1 bis 10 % sehr gering ist. Somit kann es zu einem Druckaufbau innerhalb des Abfallgebundes kommen. Die Abfallmatrix besitzt im Mittel

eine Dichte von  $2,6 \text{ g/cm}^3$ , siehe (Hebel u. Cottone, 1983).

Eine ähnliche Methodik wurde im Kernforschungszentrum in Mol erarbeitet, bei der, wie im ersten Fall, die Hülsen vorkompaktiert und im Anschluss von einer Blei-Antimon-Legierung umschlossen werden, vgl. (Broothaerts u. a., 1985). Die Ergebnisse zeigen, dass der Hohlraumanteil von 30 bis 50 % vor der Konditionierung deutlich reduziert wird. Die besten Ergebnisse liefert die Methode, wenn das Abfallgebinde vor der Befüllung mit Blei evakuiert wird. Der Einschluss bewirkt, dass der Hohlraumanteil nach Abschluss der Behandlung nur zwischen 1,5 und 4,8 % liegt. Dieses Verfahren reduziert zwar das Volumen der Abfälle im Vergleich mit den unkonditionierten Rohabfällen, jedoch steigt die Gesamtmenge an Material, die in ein Endlager verbracht werden muss aufgrund der Blei-Matrix deutlich an, zudem muss für die Endlagerung auch der hohe Bleigehalt in der Sicherheitsbetrachtung, beispielsweise wasserrechtliche Erlaubnis, Berücksichtigung finden.

Ein weiteres getestetes Verfahren, war der Einschluss der Hülsen in eine Glasmatrix (Hebel u. Cottone, 1983). Dieses Verfahren erreichte jedoch nicht die industrielle Reife, auch aufgrund der Tatsache, dass die Hülsenreste vor dem Einschluss in die Glasmatrix erhitzt werden müssen; die leichte Entflammbarkeit von feinen Zirkoniumspänen setzt sicherheitstechnische Grenzen für diese Methode. Aus der Literatur geht nicht hervor, wie mit den Endstücken verfahren werden sollte. Es ist davon auszugehen, dass diese separat konditioniert werden müssten.

Ein innovatives Verfahren stellt das Einschmelzen der Hülsenmaterialien dar, hierbei sollten die Hülsenmaterialien in einem Schmelzofen zu homogenen Abfällen eingeschmolzen werden. Dies hätte zwei Vorteile, zum einen bewirkt das Einschmelzen, dass ein Abfall mit näherungsweise 100 % der theoretischen Dichte erzeugt würde, zum anderen bewirkt das Einschmelzen, dass die anhaftenden Rückstände ausgedampft werden und teilweise in die Abgasstrecke gehen, was eine Teildekontamination des Abfalls bewirkt. Jedoch erreichte auch dieses Verfahren nicht die industrielle Reife, da ein hoher Energieaufwand für das Schmelzverfahren notwendig und zum anderen die Verarbeitungsgeschwindigkeit für eine ökonomische Nutzung zu gering war, vgl. (Hebel u. Cottone, 1983). Zudem müsste bei diesem Verfahren analog zur Verglasung der Abfälle die Endstücke separat konditioniert werden.

Die derzeit gängigen Konditionierungsverfahren basieren auf der Hochdruck-Kompaktierung der Strukturabfälle; sie wurden im Rahmen des zweiten Forschungsprogramms der EU ent-



wickelt und sind in heutigen Anlagen, wie La Hague, für die Konditionierung der Abfälle im Einsatz (Broothaerts u. a., 1985). Wie bereits beim Einschluss der Materialien in eine Blei-Matrix werden die Strukturmaterialien in eine Presskartusche gefüllt, hierbei können sowohl die Hülsen als auch die Endstücke gemeinsam konditioniert werden. Die Presskartuschen werden in einer industriellen Presse auf typischerweise 20% ihres ursprünglichen Volumens kompaktiert. Die vorherige Schüttdichte der Materialien liegt bei 0,8 bis 0,9 g/cm<sup>3</sup>, nach Abschluss der Kompaktierung sind Dichten zwischen 4,2 und 4,9 g/cm<sup>3</sup> üblich, siehe (Hebel u. Cottone, 1983). Die so erzeugten Presslinge werden in Abfallbehälter gestapelt, welche im Nachgang verschweißt werden.

Die Produkte aus der Verglasung von hochaktiven Abfällen sowie der Hochdruck-Kompaktierung der metallischen Strukturelemente sind die wesentlichen Konditionierungsprodukte, die in dieser Arbeit besprochen werden.

### 1.2.2 Abfallströme aus der Wiederaufarbeitung

Die chemische und mechanische Behandlung der abgebrannten Kernbrennstoffe bewirkt, dass das ursprüngliche Inventar in verschiedene Abfallströme aufgetrennt wird. Es muss zusätzlich zwischen Betriebs- und Prozessabfällen unterschieden werden. Betriebsabfälle beinhalten alle Stoffe, die bei der Handhabung kontaminiert werden, beispielsweise Schutzkleidung, Probengefäße, Geräte und Anlagenteile. Diese Abfälle sind als schwach-radioaktive Abfälle charakterisiert.

Die von den deutschen Energieversorgungsunternehmen an die Wiederaufarbeitungsanlagen versendeten abgebrannten Kernbrennstoffe müssen nach der Verarbeitung als wärmeentwickelnde Abfälle zurück-transportiert werden für eine zukünftige Lagerung in einem Endlager innerhalb Deutschlands. Eine Kompensationsklausel in der deutsch-englischen Vereinbarung sieht vor, dass aus der Wiederaufarbeitungsanlage in Sellafield ausschließlich eine entsprechende Menge der hochaktiven Glasgebinde nach Deutschland zurück-transportiert werden muss. Aus der Gesamtaktivität der Strukturelemente wird die Anzahl der zusätzlichen Glasprodukte bestimmt. Aus der Wiederaufarbeitung in Frankreich müssen neben dem Glasstrom "Conteneur de Standard de Déchetes Vitriifiés" (CSD-V) auch zwei mittelaktive Abfallströme transportiert werden. Die konditionierten Strukturteile der Brennelemente werden in "Conteneur de Standard de Déchetes Compacté" (CSD-C) Ge-

binde verpackt. Die aktuelle Schätzung des Bundesamts für Strahlenschutz (BfS) geht von zirka 4.100 solchen Gebinden aus, die ab 2021 nach Deutschland zurückgeliefert werden. Die Waschflüssigkeiten und Spüllösungen aus dem Auflöse- und PUREX-Prozess werden ebenfalls in eine Glasmatrix eingeschlossen. Dieser Abfallstrom beinhaltet schätzungsweise bis zu 600 Gebinde, die ebenfalls nach Deutschland zu überführen sind.

### **1.3 Qualitätskontrolle und Charakterisierung radioaktiver Abfälle**

Die Prüfaufgaben der Produktkontrolle richten sich nach der nationalen Abfall-Management-Strategie für radioaktive Stoffe. Ziel der Qualitätskontrolle ist es sicherzustellen, dass die erzeugten Abfallgebinde so konditioniert sind, dass sie den gültigen Annahmebedingungen für ein deutsches Endlager genügen. Die nuklearen Inventarangaben müssen unabhängig verifiziert werden und die Begleitdokumentation vollständig und plausibel vorliegen. Die Prüfmethodik und der Prüfungsumfang hängen von den betrachteten Abfällen ab. Die Internationale Atomenergie Organisation, im Englischen "International Atomic Energy Agency" (IAEA), unterscheidet für die Charakterisierung von Abfällen zwischen stabilen und variablen Abfallströmen, vgl. (IAEA, 2007). Für stabile Abfallströme wird davon ausgegangen, dass die Rohabfälle stets ähnliche Eigenschaften aufweisen und die Herstellung der konditionierten Gebinde nach einem festgelegten industriellen Prozess mit definierten Herstellungsparametern abläuft. Variable Abfallströme hingegen weisen eine starke Variabilität in den Rohabfällen auf, was zu einer größeren Bandbreite der Abfallstoffe, zumeist auch zu einer größeren Heterogenität des Abfalls, führt. Eine komplexe Strategie der Begutachtung ist für solche Abfallströme erforderlich. Im Fall der stabilen Abfallströme wird die Produktkontrolle zumeist im Wege einer kampagnen-unabhängigen Überprüfung der Produktspezifikation und eines besonders qualifizierten Herstellungsprozess durchgeführt. Sowohl die Produkteigenschaften als auch die Prozessspezifikation werden einem individuellen Qualifizierungsverfahren unterzogen, bei dem es zu untersuchen gilt, ob der vorliegende Herstellungsprozess geeignet ist, endlagerfähige Abfallgebinde zu erzeugen. Die Einhaltung der endlagerkonformen Produkteigenschaften und dazu erforderlichen Prozessbedingungen sind nachweisbar während der gesamten Kampagne einzuhalten und zu verifizieren. Die Annahmebedingungen für ein jeweiliges Endlager bestimmen also die Produkteigenschaften, die somit den Referenzstandard bei der Konformitätsprüfung darstellen. Andernfalls darf nicht in das zu betrachtende Endlager eingelagert werden. Rückzuführende Produkte

dürften bei Nichteinhaltung auch nicht in ein Zwischenlager nach Deutschland transportiert werden. Nach erfolgter Prozess- und Produktqualifizierung wird mittels vollständiger Dokumentationsprüfung untersucht, ob die Abfallgebinde die erforderlichen Garantieparameter einhalten. Zusätzlich erfolgen in regelmäßigen Abständen Inspektionen beim Abfallkonditionierer vor Ort, um sicherzustellen, dass der Herstellungsprozess den Spezifikationen entspricht und alle geforderten Prozesseigenschaften eingehalten werden. Dazu werden u.a. Stichprobenprüfungen an einzelnen Abfallgebinden vorgenommen.

Eine komplexe Strategie muss bei der Begutachtung von variablen Abfallströmen angewendet werden. Die kampagnen-abhängige Prüfung muss sicherstellen, dass durch Probenentnahmen und zerstörungsfreie Messmethoden, die Produkteigenschaften hinreichend genau bestimmt werden können. Ein wichtiger Punkt ist hierbei die Auswahl der Stichproben, um zu einer repräsentativen und allgemeingültigen Abschätzung der Produkteigenschaften zu gelangen, die in der vorliegenden Kampagne zu erwarten sind. Die Methodik und mögliche Strategien sind in der technischen Notiz TE-1537 der IAEA zusammengestellt (IAEA, 2007).

### **1.4 Zielsetzung für ein Prüfprogramm**

Die Beurteilung der Produktqualität eines Abfallgebundes setzt voraus, dass sowohl der Herstellungsprozess, als auch die Gebindeeigenschaften selbst unabhängig verifiziert werden können. Diese Form der Plausibilitätsprüfung bedingt, dass dem Gutachter genügend Informationen zur Verfügung stehen, um seine Aufgabe durchzuführen. Die mit dieser Arbeit angestoßene Entwicklung eines Prüfprogramms soll in Zukunft eine weitere Säule der Produktkontrolle darstellen. Dies ist im Falle der französischen CSD-C Gebinde insofern erforderlich, da dem deutschen Gutachter originäre experimentelle Daten und Kalibrierparameter der nuklearen Messeinrichtungen nicht im wünschenswerten Umfang zur Verfügung gestellt werden. Diese detaillierten Informationen unterliegen dem industriellen Know-How Schutz der AREVA NC, so dass die korrekte Interpretation der nuklearen Inventarangaben auf anderem Wege, nämlich mit Hilfe eines mit dieser Arbeit zu erstellendem Prüftool, erreicht werden soll. Die Zielsetzung ist also, dass für die Produktkontrolle ein umfassendes Softwareprodukt entwickelt wird, welches dazu genutzt werden kann, Annahmen und Angaben zu einem radioaktiven Abfallstrom durch numerische Modellierung zu hinterfragen.

Die vorliegende Arbeit entstand im Zusammenwirken mit der Produktkontrollstelle für radioaktive Abfälle (PKS). Daher liegt der Schwerpunkt in der Beschreibung von Abfallströmen aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen. Da zum gegenwärtigen Zeitpunkt nicht klar abzuschätzen ist, welche Themenfelder und Abfallströme die PKS in Zukunft bearbeiten wird, ist das Softwareprodukt möglichst flexibel gestaltet. Dies ermöglicht es den Benutzern auf Basis der bereits vorhandenen Funktionalität neue Berechnungs- und Beurteilungsfunktionalitäten zu implementieren. Der Aufbau der Software ist modular und koppelt weltweit anerkannte Simulationscodes, um die Eigenschaften der Abfallgebinde abzuleiten. Die Software dient der Szenarioanalyse und unterstreicht die Forderung der IAEA, dass die Begutachtung eines Abfallstroms auch die Eigenschaften der Rohabfälle mit berücksichtigen muss, vgl. (IAEA, 2007). Die Software soll darüber hinaus als Basis für die Begutachtung der Gebindebegleitdokumentation dienen.

Das Kapitel 2 fasst die für das Verständnis dieser Arbeit notwendigen reaktorphysikalischen Grundlagen zusammen. Die Simulationscodes der Kerntechnik sind mitunter sehr ressourcenintensiv, daher wurde bereits zu Beginn der Arbeit ein Rechercluster entwickelt und aufgebaut, welches in Kapitel 4 vorgestellt wird. Die dieser Arbeit zugrundeliegende Software wird mit ihrem Konzept und einigen Beispielen in Kapitel 3 besprochen. Im Kapitel 5 erfolgt die Validierung der numerischen Simulationsprogramme, auf deren Daten das Softwareprogramm aufsetzt. Die Software wird im weiteren Verlauf der Arbeit dazu verwendet, die Eigenschaften des mittelaktiven, metallischen Abfallstroms aus der Wiederaufarbeitung zu charakterisieren. Hierzu erfolgt in Kapitel 6 eine Darstellung von Korrelationsfunktionen zur Beschreibung und Berechnung von Produkteigenschaften. Die aus der numerischen Modellierung erzeugten virtuellen Abfallgebindeigenschaften werden im Kapitel 7 mit den derzeit gültigen Freigaben des Bundesumweltministeriums verglichen. Im abschließenden Kapitel 8 wird untersucht, wie sich eine Änderung des Abfallstroms außerhalb der derzeit akzeptierten Eigenschaften auf die Abfallgebinde auswirkt und unter welchen Bedingungen diese mit den derzeit gültigen Freigaben konform sind. Eine Zusammenfassung der Entwicklungsarbeit und ein Ausblick in weitere Aufgaben- und Anwendungsfelder erfolgt in Kapitel 9.



## 2 Reaktorphysikalische Grundlagen

Die Nuklidzusammensetzung der Abfallströme aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen wird maßgeblich vom Verhalten des Brennstoffs im Neutronenfeld des Reaktorkerns bestimmt. In diesem Kapitel werden die Grundlagen der verschiedenen Typen von Kernreaktoren dargelegt, die einen Einfluss auf die Materialzusammensetzung der zu erwartenden Abfälle besitzen.

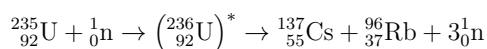
### 2.1 Funktionsweise eines Leichtwasserreaktors

Die in dieser Arbeit betrachteten Abfallströme entstammen der Wiederaufbereitung von Brennstoffen aus Leichtwasserreaktoren. Daher wird in diesem Abschnitt die Funktionsweise dieses Reaktortyps dargestellt. Die Energiefreisetzung in einem Kernreaktor geschieht über die Spaltung von schweren Atomkernen. Im Fall der Leichtwasserreaktoren kommt entweder schwach angereichertes Urandioxid oder Mischoxidbrennstoffe aus Uran und Plutonium zum Einsatz. Sowohl Siede- als auch Druckwasserreaktoren sind von ihrer Auslegung her thermische Reaktoren; die Spaltneutronen müssen einen Großteil ihrer anfänglichen hohen kinetischen Energie abgeben, bevor sie im Brennstoff neue Spaltungen induzieren.

Das Uranisotop  $^{235}\text{U}$  ist thermisch spaltbar, wohingegen  $^{238}\text{U}$  nur bei schnellen Neutronen einen signifikanten Spaltquerschnitt besitzt. Bei einer Anreicherung kleiner als 5,0 [Gew.-%]  $^{235}\text{U}$  besteht der Hauptanteil des Brennstoffs aus dem nicht thermisch spaltbaren  $^{238}\text{U}$ . Dieses Isotop wird jedoch durch Neutroneneinfangreaktionen und zwei anschließenden  $\beta^-$ -Zerfällen zum thermisch spaltbaren Plutoniumisotop  $^{239}\text{Pu}$ .

Der Energieverlust der Neutronen geschieht hauptsächlich über elastische und inelastische Stöße mit dem Neutronenmoderator, aber auch durch inelastische Stöße an Strukturmaterialien oder dem Brennstoff erfahren die schnellen Neutronen eine Abbremsung. Im Fall der

Leichtwasserreaktoren dient das vorbei-strömende Wasser sowohl als Neutronenmoderator als auch als Kühlmittel der Brennelemente. Durch Streuung an dessen Wasserstoffkernen verlieren die Neutronen rapide die kinetische Energie. Im Mittel sind zur Thermalisierung in etwa 20 Stöße notwendig (Lamarsh u. Baratta, 2001). Thermische Neutronen stehen im energetischen Gleichgewicht mit der umgebenden Materie. Treffen die abgebremsten Neutronen wieder auf Uran im Brennstab, können dort erneut Spaltungen induziert werden. Bei der Spaltung der schweren Atomkerne wird Energie in Form unterschiedlicher Anteile freigesetzt. Die freigesetzten Energiemengen entsprechen der Einstein'schen Masse-Energie-Äquivalenz. Durch die Massenunterschiede der beteiligten Reaktionspartner kann die Energiefreisetzung bestimmt werden. Eine mögliche Spaltreaktion könnte hierbei sein:



Der angeregte  ${}^{236}\text{U}$ -Kern weist eine Instabilität gegenüber der spontanen Spaltung auf. Im Tröpfchenmodell des Atomkerns besteht dieser aus Nukleonen, die sich wie die Moleküle in einem Flüssigkeitstropfen verhalten, vgl. (Vertes u. a., 2011). Durch das absorbierte zusätzliche Neutron gerät der Kern in eine Schwingung, welche bei starker Deformation zur Spaltung führt.

Die ursprüngliche Masse des angeregten  ${}^{236}\text{U}$ -Kern beläuft sich auf  $236,05\text{ u}^1$ . Die Masse der Spaltprodukte und der drei zusätzlichen emittierten Neutronen ergibt  $235,837\text{ u}$ . Die Massendifferenz verteilt sich zum größten Teil als kinetische Energie auf die Endprodukte, wobei die schweren Spaltprodukte den Hauptteil bilden. Ein Teil der Energie wird als  $\gamma$ -Quanten und Neutrinos emittiert. Über Stoßprozesse geben die Spaltprodukte ihre kinetische Energie an das umgebende Material ab, was zu einer Erwärmung führt. Abgesehen von der Energie der Neutrinos, lässt sich durch Einfang- und Stoßprozesse ein Großteil der freigesetzten Energie zur Wärmeerzeugung ausnutzen. Zusätzlich zur prompten, unmittelbar nach der Spaltung stattfindenden Energiefreisetzung, kommt es durch den Zerfall von Spaltprodukten, mit hohem Neutronenüberschuss im Kern, zu einer verzögerten Energiefreisetzung durch  $\beta^-$ -Zerfälle und verzögerte Neutronenemission. Die gesamte freigesetzte Energie ist abhängig vom Spaltstoff. Im Fall von  ${}^{235}\text{U}$  beträgt diese näherungsweise  $200\text{ MeV}$  pro Spaltung.

Durch die Reaktorparameter wird das System so eingestellt, dass eine stabile Kettenreak-

---

<sup>1</sup>1 u ist die atomare Masseneinheit und entspricht  $1/12$  der Masse des Isotops  ${}^{12}\text{C}$

tion eintritt. Die Rate der induzierten Spaltungen aus einer Generation entspricht hierbei der Rate der Spaltvorgänge in der nächsten Generation.

Das Brennelement eines Leichtwasserreaktors besteht aus Brennstäben, welche in einem zumeist rechtwinkligem Gitter angeordnet sind. Diese Brennstäbe beinhalten Kernbrennstoffpellets, die Hüllrohre der Brennstäbe bestehen aus Zircaloy, einer auf Zirkonium basierten Legierung. In europäischen und amerikanischen Brennelementdesigns sind die Stäbe in Abstandshaltern angeordnet (Nuc, 2004). Die Brennelemente besitzen zusätzliche Führungsrohre für Instrumentierungs- oder Steuerstäbe. Zur mechanischen Stabilisierung des Brennelements werden mehrere Abstandshalter entlang des gesamten Elements verwendet. Diese bestehen meist aus der Nickellegierung Inconel oder ebenfalls Zircaloy (Agency, 2007). Die Fixierung der Brennstäbe wird durch die Endstücke erreicht. Diese Kopf- und Fußstücke sind meist aus Edelstahl oder Inconel hergestellt.

Der Hauptunterschied zwischen Druck- und Siedewasserreaktoren besteht darin, dass in einem Druckwasserreaktor das Sieden des Wassers durch einen höheren Betriebsdruck unterbunden wird. Erst im Sekundärkreislauf wird durch Dampferzeuger Wasserdampf erzeugt. Mit diesem werden die Turbinen/Generatoren für die Elektrizitätserzeugung betrieben. Für den Siedewasserreaktor entfällt der Sekundärkreislauf und die Turbinen werden direkt mit den erzeugten Wasserdampf aus dem Reaktorkern betrieben. Dies führt zu einer abgewandelten Reaktivitätskontrolle. Für den Druckwasserreaktor kommt zusätzlich zu den Kontrollstäben Borsäure im Moderator zum Einsatz, welcher durch das "Chemical Volume Control System" (CVCS) kontinuierlich dem Primärkreislauf hinzugefügt oder entfernt wird. Durch seinen hohen Einfangquerschnitt ist Bor ein Neutronengift. Die Neutronengifte sind eine Möglichkeit zur Regelung der Kritikalität. Durch Zugabe von Borsäure zum Moderator wird die Überschussreaktivität des Kerns kompensiert. Zum Beginn eines Zyklus werden dem Moderator ca. 2.250 [ppm] Borsäure zugefügt. Im Verlauf des Zyklus baut sich Xenon auf, bei dem Nuklid  $^{135}\text{Xe}$  handelt es sich ebenfalls um ein Neutronengift. Die Gesamtreaktivität nimmt mit fortschreitendem Abbrand ab, sodass die Borsäurekonzentration über den Zyklus kontinuierlich reduziert werden muss, um eine konstante Kritikalität beizubehalten, vgl. (Lamarsh u. Baratta, 2001).

Da bei einem Siedewasserreaktor der Dampf zum Betrieb der Turbinen direkt eingespeist wird, kann zur Reaktivitätsregelung kein Neutronengift im Moderator bzw. Kühlmittel verwendet werden. Daher werden bei Siedewasserreaktoren abbrennbare Neutronengifte in ausgewählten Brennstäben verwendet. Diese "Burnable Poison Rods" (BPR) bestehen



hauptsächlich aus Boroxid ( $B_2O_3$ ) oder Gadoliniumoxid ( $Gd_2O_3$ ).

Der Anstieg der Reaktivität, bedingt durch den Abbrand der BPR, kompensiert teilweise die Reaktivitätsminderung durch den fortschreitenden Abbrand des Brennstoffs. Durch den Einsatz von BPR und unterschiedlichen Anreicherungen innerhalb eines Brennelements, besitzen Brennelemente für Siedewasserreaktoren eine größere geometrische Heterogenität im Vergleich zu Druckwasserelementen. Moderne DWR-Systeme sind ebenfalls mit BPR ausgelegt, damit die Zugabe von Borsäure vermindert werden kann und auch weniger Steuerstäbe notwendig sind. Dies führt insgesamt zu einer effizienteren Nutzung des Brennstoffs. Auf weitergehende Aspekte der Reaktorauslegung und Technik sei an dieser Stelle auf die einschlägige Literatur verwiesen (Lamarsh u. Baratta, 2001).

### 2.2 Brennstoffparameter

Mit zunehmender Standzeit der Brennelemente im Reaktor treten durch Spaltprozesse und Neutroneneinfangreaktionen Änderungen der Zusammensetzung des ursprünglichen Brennstoffs ein. Durch Spaltung werden leichtere Nuklide, auch als Spaltprodukte bezeichnet, gebildet. Der Hauptanteil der Massenzahlen dieser Spaltprodukte ist verteilt zwischen 90 und 140, wie in Abbildung 2.2 dargestellt ist. Durch Neutroneneinfangreaktionen, wie  $(n,\gamma)$ ,  $(n,p)$  etc., werden die vorhandenen Materialien aktiviert. Auch aus dem ursprünglichen Brennstoff entstehen durch Ketten von Neutroneneinfangreaktionen und Zerfallsprozessen die Minoren Actinoiden. Diese schweren Nuklide mit Massenzahlen oberhalb des Plutoniums sind für die Sicherheitsbetrachtung von großer Bedeutung.

Viele Betriebsparameter und Eigenschaften des Brennstoffs beeinflussen das Verhalten während der Betriebszeit im Reaktor. In diesem Abschnitt sind die wichtigsten Parameter im Hinblick auf die Simulation von Eigenschaften und Verhalten von Brennelementen wiedergegeben. Die Mengenverteilung aller in der Brennstoffmatrix enthaltenen Nuklide wird auch als Nuklidinventar bezeichnet. Der zentrale Parameter bei der Beschreibung des Nuklidinventars ist der Abbrand eines Brennstoffs. Die Einheit der gesamten Energiefreisetzung wird angegeben in Megawatttagen. Dieser Parameter beschreibt die während des Reaktorbetriebs freigesetzte Energiemenge.

Häufig werden die Abbrandzustände eines Brennstoffs auf eine Massenbasis bezogen. Typi-

scherweise wird hierbei eine metrische Tonne (1000 kg) des ursprünglichen Spaltmaterials als Basis herangezogen. In Abhängigkeit der verwandten Nomenklatur sind unterschiedliche Bezeichnungen gebräuchlich. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit wird ausschließlich die Bezeichnung  $[\text{MWd}/t_{SM}]$  oder  $[\text{GWd}/t_{SM}]$  verwendet, um eindeutig zu beschreiben, dass die Abbrände sich auf eine Tonne des ursprünglichen Brennstoffs beziehen, unabhängig ob es sich dabei um Urandioxid- oder ein Mischoxidbrennstoff handelt. Weiter gilt die Festlegung, dass nicht die elektrische, sondern die thermische Leistung des Reaktors als Bezugsgröße Verwendung findet.

Die Spaltrate für einen Reaktor mit einem Leistungsniveau  $P$   $[\text{MW}_{th}]$  lässt sich aus der vereinfachten Formel bestimmen:

$$\text{Spaltrate} = P[\text{MW}_{th}] \cdot \frac{10^6[\text{J}]}{[\text{MWs}]} \cdot \frac{[\text{Spaltung}]}{200[\text{MeV}]} \cdot \frac{[\text{MeV}]}{1,6 \times 10^{-13}[\text{J}]} \cdot 86400[\text{s}/\text{Tag}] \quad (2.1)$$

Sie liegt bei näherungsweise  $2.70 \times 10^{21} \times P$  [Spaltungen/Tag]. Dividiert man diese Zahl durch die Avogadrokonstante und multipliziert mit der Molaren-Masse von  $^{235}\text{U}$  ergibt sich, dass die Spaltung von 1,05 g  $^{235}\text{U}$  einer Energiefreisetzung von 1 MWd entspricht. Realistischer muss beachtet werden, dass im Reaktorbetrieb ein nicht zu vernachlässigbarer Anteil der Spaltungen aus dem  $^{239}\text{Pu}$  entsteht, daher ist die obige Formel nur als Abschätzung zu sehen. Die Spaltung von  $^{239}\text{Pu}$  im Reaktor liefert etwa 1/3 der insgesamt aus dem Kernbrennstoff nutzbaren Wärmeenergie.

Das mittlere Leistungsniveau eines Brennelements wird häufig durch die lineare Stabileistung angegeben. Diese Größe beschreibt die mittlere Energiefreisetzung pro Längeneinheit eines Brennstabs. Für die richtige Normierung der Simulationen muss diese Größe umgerechnet werden, um auf eine spezifische Leistung bezüglich der Masse des Brennstoffs zu gelangen. Bezogen auf die Brennstabgeometrie sowie die Dichte des Brennstoffs lautet die Umrechnungsformel:

$$P[\text{MW}_{th}/t_{SM}] = \frac{L[\text{W}/\text{cm}]}{A[\text{cm}^2]\rho_f[\text{g}/\text{cm}^3]} \times \frac{10^6[\text{g}/t_{SM}]}{10^6[\text{W}/\text{MW}_{th}]} \quad (2.2)$$

A entspricht hierbei dem Querschnitt des Brennstoff-Pellets. Bei Anwendung dieser Formel ist zu beachten, dass nicht die Gesamtdichte des Brennstoffs, sondern nur die Dichte des spaltbaren Materials Anwendung findet.

Die Wahl des Brennelementlayouts beeinflusst ebenfalls das Verhalten während der Stand-

zeit. Von entscheidender Bedeutung ist hierbei das Mengenverhältnis zwischen Brennstoff und Moderator. Durch die schnelle Moderation der Neutronen, wird der Verlust durch Resonanzabsorption im epithermischen Energiebereich reduziert. Wird das Moderator/Brennstoff-Verhältnis ( $N_m/N_f$ ) vergrößert, nimmt die Neutronenleckage ab, da zum einen die Reichweite der Neutronen durch stärkere Thermalisierung sinkt, zum anderen die Einfangwahrscheinlichkeit steigt. Im gleichen Maße steigt die Absorption der Neutronen im Moderator an, was zu einem Abfall des thermischen Nutzungsfaktors führt. Wird das Verhältnis verkleinert, nimmt die Zeit für die Moderation der Spaltneutronen zu und die Wahrscheinlichkeit für einen Einfang im Resonanzbereich steigt. Zudem nimmt die Leckage der Neutronen zu. Das Verhalten eines variierenden Moderator zu Brennstoffverhältnis ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Aus der Darstellung ist erkennbar, dass die Wahl des Verhältnisses einen

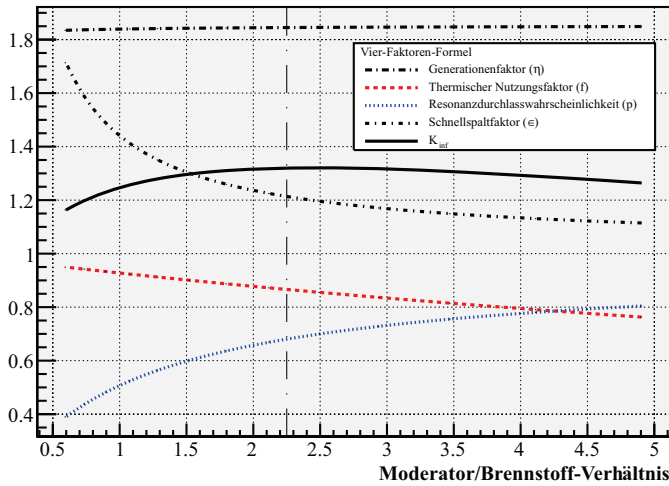


Abbildung 2.1: Variation des Moderator zu Brennstoffverhältnisses berechnet mittels TRITON/NEWT (Bowman, 2011)

direkten Einfluss auf die Kritikalität besitzt. Betrachtet man die Vierfaktorengleichung:

$$k_{inf} = \eta \epsilon p f \quad (2.3)$$

so ist ersichtlich, dass durch die Wahl des Moderator/Brennstoff-Verhältnis hauptsächlich die Resonanzdurchlasswahrscheinlichkeit  $p$  und der thermische Nutzungsfaktor  $f$  beein-

flusst werden. Die Reaktoren sind typischerweise untermoderiert ausgelegt. Der Anstieg der Temperatur führt zu einer Ausdehnung des Moderators und somit der Abnahme der Dichte. Dies bewirkt im Fall eines übermoderierten Systems, dass das Moderator/Brennstoffverhältnis sinkt, wodurch es zu einer positiven Reaktivitätsrückkopplung und demnach einen weiteren Temperaturanstieg kommt. Ein entsprechender Temperaturanstieg führt bei einem untermoderierten System zu einem Absinken der Reaktivität und wirkt der Entwicklung entgegen (Lamarsh u. Baratta, 2001). Dies kann als inhärente Sicherheitsmaßnahme angesehen werden. Eine Änderung des Moderator/Brennstoff-Verhältnis bewirkt ebenfalls eine Änderung des Neutronenspektrums. Eine Abnahme des Verhältnisses führt dazu, dass das Neutronenspektrum sich verhärtet und somit die Reaktionsraten beeinflusst. In Abbildung 2.1 ist ersichtlich, dass mit abnehmendem Moderator zu Brennstoffverhältnis der Anteil des Schnellsplaltfaktors  $\epsilon$  zunimmt.

Eine weitere wichtige Größe ist die anfängliche Anreicherung von  $^{235}\text{U}$ . Der Zielabbrand eines Brennelements ist limitiert durch den Anteil an  $^{235}\text{U}$  im Brennstoff.

Seit Beginn der 1970er Jahre ist der mittlere Zielabbrand bei Leichtwasserreaktoren von 20.000 MWd/ $t_{SM}$  auf über 40.000 MWd/ $t_{SM}$ , im Jahre 2005, angestiegen. Erreicht wurde dieser Anstieg hauptsächlich durch die Anwendung neuer Cladding-Materialien, die die Stabilität der Brennelemente verbessern und durch den Einsatz von höher angereicherten Kernbrennstoffen (Int, 2011). Die mittlere Anreicherung stieg von 2,5 Gew.-% auf nunmehr fast 5,0 Gew.-%  $^{235}\text{U}$ .

Als weitere Parameter, welche für die genaue Vorhersage der Nuklidkonzentrationen im abgebrannten Brennstoff wichtig sind, zählen die Moderator- und Brennstofftemperatur, Moderatorichte und der Borsäureanteil. Diese Parameter beeinflussen das Neutronenspektrum und führen bei einer Variation zu einer Änderung des Abbrandverhaltens. Im Rahmen einer Sensitivitätsanalyse werden die Einflüsse dieser Faktoren auf die Zusammensetzung des Brennstoffs in Abschnitt 6.2 besprochen.

Für die Berechnung des Abfallinventars ist der Parameter Kühlzeit bzw. Abklingzeit von zentraler Bedeutung. Durch den radioaktiven Zerfall nimmt über die Zeit sowohl die Nachzerfallswärme als auch die Radiotoxizität ab. Die Kühlzeit besitzt einen großen Einfluss auf die Eigenschaften von radioaktiven Abfallgebinden, da in Abhängigkeit der Kühlzeit einige Spezies von Radioisotopen bereits zerfallen und somit nicht mehr direkt über Messmethoden ermittelbar sind. Die Ermittlung der Korrelationsfunktion für die Kühlzeit in

Abhängigkeit zweier Leitnuklide wird ausführlich in Kapitel 6.3 behandelt. Der Begriff Korrelationsfunktion bezieht sich auf die Ermittlung eines gesuchten Parameters aus dem Verhältnis von zwei oder mehr Schlüsselnuklidaktivitäten oder Massenverhältnissen.

### 2.3 Typisches Radionuklidinventar abgebrannter Kernbrennstoffe

Die in dieser Arbeit betrachteten Abfallströme entstammen der Wiederaufarbeitung von Brennelementen aus Leichtwasserreaktoren. Daher ist an dieser Stelle das typische Radionuklidinventar eines solchen abgebrannten Brennstoffs dargestellt.

Die ermittelten Nuklidkonzentrationen sind bezogen auf eine Tonne Schwermetall des ursprünglichen Brennstoffs. Die Nuklidinventare werden für ein Konvoi-Brennelement der Firma Siemens dargestellt. Für die Abbrandrechnung wird das Softwarepaket SCALE 6.0 verwendet (Bowman, 2011).

Die detaillierte Beschreibung über die Software und die Methodik einer Abbrandrechnung erfolgt im Abschnitt 3.2. Ein Konvoi-Brennelement umfasst 300 Brennstäbe, welche in einem rechtwinkligen Gitter angeordnet sind. Zusätzlich beinhaltet das Element 24 Stabpositionen mit leeren Führungsrohren für die Steuerstäbe. Der Brennstoff besteht in diesem Beispiel aus einem angereicherten Urandioxid mit einem Anreicherungsgrad von 3,8 Gew.-% an  $^{235}\text{U}$ . Die Brennstäbe sind umschlossen mit einer Metallhülse, bestehend aus der Zirkoniumlegierung Zircaloy-4.

Auf den geometrischen Aufbau sowie die angewendeten Parameter der Abbrandrechnung wird in Abschnitt 5.1.3 genauer eingegangen, da dieses Brennelementdesign auch bei der Validierung des Abbrandcodes zum Einsatz kommt. Die angegebenen Nuklidkonzentrationen und Verhältnisse entsprechen den Werten am Ende des jeweiligen Betriebszyklus. Die Abbrandzustände sind entsprechend 17.500, 35.000 sowie 54.000 MWd/tSM.

Die Menge an Spaltprodukten steigt mit zunehmendem Abbrand linear an. Die Verteilung der Spaltprodukte auf die verschiedenen Massenzahlen ist gegeben durch die Spaltausbeute. Die Häufigkeiten der Spaltprodukte ist in Abbildung 2.2 dargestellt.

Die Spaltausbeuten verschieben sich zu größeren Massenzahlen hin, wenn  $^{239}\text{Pu}$  anstatt  $^{235}\text{U}$  gespalten wird. Für die Isotope, die auf dem Plateau der Doppelhöckerkurve liegen,

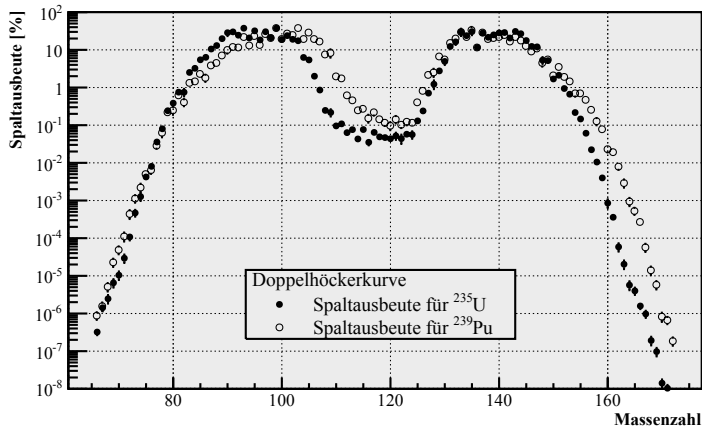


Abbildung 2.2: Doppelhöckerkurven für die thermische Spaltung von  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$  (Entnommen aus der ENDF-B/VII.0-Bibliothek)

ist dies nicht von Relevanz. Die Isotope an den Flanken weisen Abweichungen von mehr als einer Größenordnung beim Vergleich ihrer Spaltausbeuten auf. Dies ist vor allem für die Betrachtung von Schlüsselnukliden, wie dem  $^{154}\text{Eu}$  von Interesse, da mit zunehmendem Abbrand auch mehr Spaltungen in dem  $^{239}\text{Pu}$  ausgelöst werden und sich somit die Erzeugungsrate ändert. Als Schlüsselnuklide bezeichnet man typischerweise Nuklide, die durch passive Messmethoden einfach zu bestimmen sind (Hermann u. Berndt, 1983). Die ermittelten Aktivitäten der Schlüsselnuklide werden dazu genutzt mittels Korrelationsmethoden auf die Aktivitäten von nicht direkt bestimmbar Nukliden zu schließen. Diese Methodik wird in Kapitel 6 besprochen.

Die Isotope auf den Plateaus sind besonders für die Bestimmung des Abbrands geeignet, da sie zum einen keine große Variation durch das sich ändernde Brennstoffinventar erfahren und zum anderen eine hohe Wahrscheinlichkeit für die Erzeugung besitzen. Als Beispiele für Schlüsselnuklide sind hierbei das  $^{137}\text{Cs}$  als auch die stabilen Neodymisotope, wie  $^{146}\text{Nd}$  oder  $^{148}\text{Nd}$  zu nennen.

Selbst nach Erreichen des Zielabbrands besteht der abgebrannte Kernbrennstoff weiterhin fast zu 95 % aus Urandioxid. Aus dem ermittelten Verlust an Schwermetall kann durch Anwendung der Gleichung 2.1 der Zielabbrand abgeschätzt werden. Aus der voreingestellten

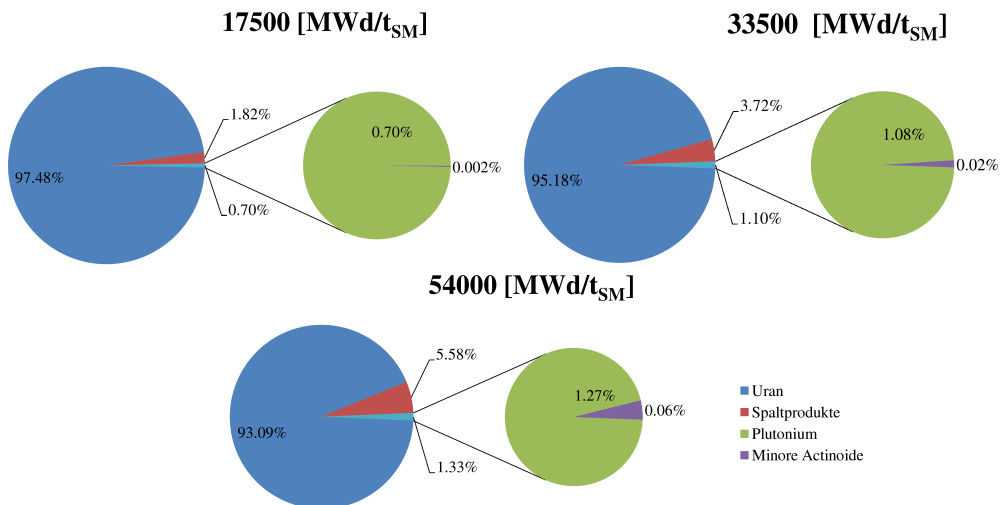


Abbildung 2.3: Berechnete Zusammensetzung des abgebrannten Kernbrennstoffs bezogen auf eine Tonne Schwermetall

spezifischen Leistung sowie der Standzeit des Brennelements ermittelt sich der theoretische Zielabbrand zu den 54.000 MWd/tSM. Aus dem Schwermetallverlust und der vereinfachten Abschätzung errechnet sich der Abbrand zu 53.745 MWd/tSM. Diese Form von Plausibilitätsprüfung dient zur Absicherung, ob die SCALE-Modelle entsprechend den Vorgaben parametrisiert sind.

Der Aufbau von Plutonium geht mit fortschreitenden Abbrand in eine Sättigung über, da die erzeugten Isotope <sup>239</sup>Pu sowie <sup>241</sup>Pu ebenfalls thermisch spaltbar sind und somit verbraucht werden. Zudem kommt es durch fortwährenden Neutroneneinfang und radioaktiven Zerfall zur Bildung von Minoren Actinoiden. Der Anteil der Transurane Americium und Curium nimmt durch den zeitverzögerten Aufbau mit zunehmenden Abbrand überproportional zu, siehe Abbildung 2.3.

Die Spaltproduktkonzentration macht nur einen kleinen Anteil an der Gesamtmasse des abgebrannten Brennstoffs aus, jedoch sind die Spaltprodukte aufgrund ihrer kurzlebigen Anteile die Hauptaktivitätsträger. Direkt nach Abschaltung des Reaktors liegt die Energiefreisetzung bei näherungsweise vier bis acht Prozent der ursprünglichen Reaktorleistung (Nichols, 2002). Diese Freisetzung wird umgangssprachlich als Nachzerfallswärme bezeichnet. Dies macht deutlich, warum ein Reaktorkern auch nach erfolgter Abschaltung weiterhin

gekühlt werden muss.

Abbildung 2.4 zeigt den zeitlichen Verlauf der thermischen Leistung eines Brennstoffs nach Abschaltung. Innerhalb von 180 Tagen Kühlzeit sinkt die thermische Leistung von  $1,43 \times 10^6 \text{ W/t}_{SM}$  auf  $2,08 \times 10^4 \text{ W/t}_{SM}$  ab. Durch den Zerfall der radioaktiven Elemente

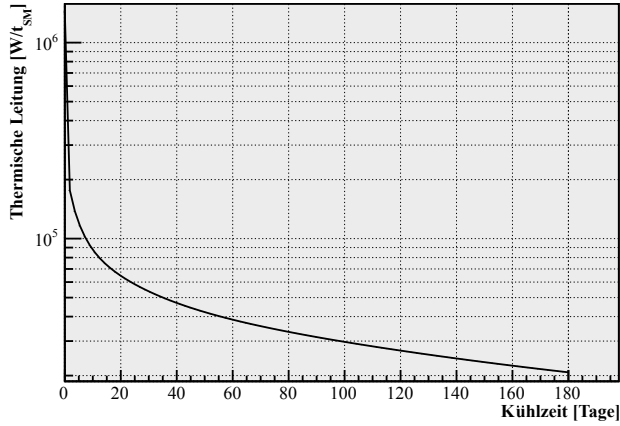


Abbildung 2.4: Berechnete Nachzerfallswärme eines Brennelements mit einem Abbrand von  $45 \text{ [GWd/t}_{SM}]$

im Abfallgebinde sinkt über diese Zeit auch die Radiotoxizität. Die Einheit der Radiotoxizität ist die effektive Folgedosis, angegeben in Sievert. Die Radiotoxizität wird häufig dazu verwendet, unterschiedliche Entsorgungsstrategien und Methoden objektiv miteinander zu vergleichen. Das Verhalten der Radiotoxizität für einen abgebrannten Kernbrennstoff ist in Abbildung 2.5 dargestellt.

Die Berechnung der Radiotoxizität geschieht in zwei Schritten. Im ersten Teil wird aus der ermittelten Nuklidzusammensetzung des Abfalls die Aktivität der enthaltenen Isotope bestimmt. Die ermittelte Aktivität wird im zweiten Schritt mit den Dosiskonversionsfaktoren gemäß der ICRP-Richtlinie 72 gewichtet (Smith, 1997). Die Radiotoxizität der unterschiedlichen Nuklidspezies ist die Summe der entsprechenden Einzelnuklide.

In den ersten 50 Jahren nach Reaktorentnahme eines Brennelements dominieren die Spaltprodukte die Radiotoxizität des Abfalls. Nach 500 Jahren ist der Hauptanteil der Spaltprodukte zerfallen. Langlebige Spaltprodukte wie die Isotope  $^{99}\text{Tc}$  oder  $^{129}\text{I}$  dominieren



über lange Zeiträume dieser Stoffgruppe. Der Anteil der Minoren Actinoiden nimmt in den ersten Jahren der Abklingzeit zu, dies ist hauptsächlich auf den  $\beta^-$ -Zerfall des  $^{241}\text{Pu}$  in das  $^{241}\text{Am}$  zurückzuführen. Langfristig wird die Radiotoxizität durch die Plutonium-Isotope dominiert.  $^{247}\text{Cm}$  sowie  $^{248}\text{Cm}$  weisen zwar lange Halbwertszeiten von  $16.8 \times 10^6$  bzw.  $0.35 \times 10^6$  auf, jedoch ist deren Bildungsrate in Kernreaktor deutlich geringer. Aus dem Graphen in Abbildung 2.5 ist ersichtlich, dass unterschiedliche Zeitbereiche von unterschiedlichen Radionuklidgruppen dominiert werden.

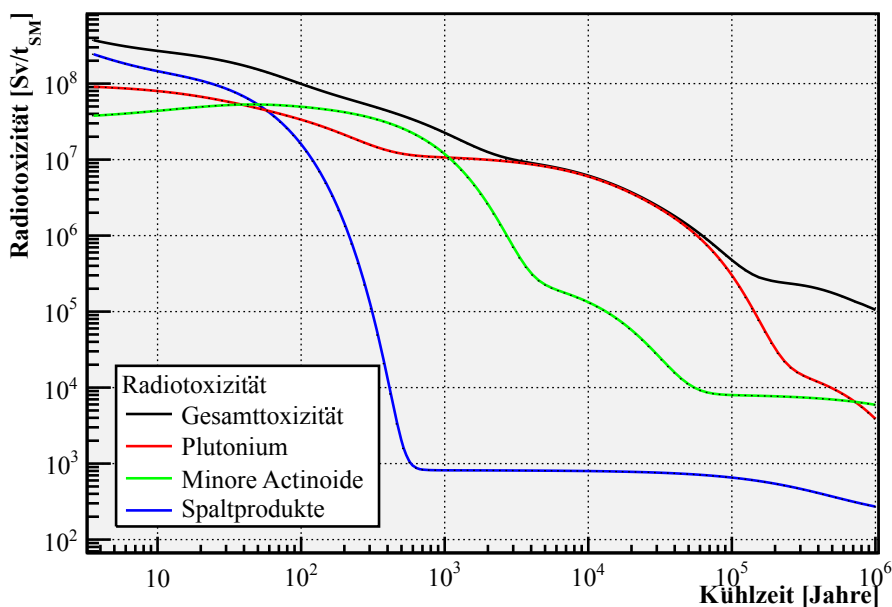


Abbildung 2.5: Berechnete Radiotoxizität eines Brennelements mit einem Abbrand von 45  $[\text{GWd/t}_{\text{SM}}]$

## **3 Konzept eines Prüfprogramms**

Bei der Begutachtung der Dokumentation von radioaktiven Abfällen müssen die Methoden zur Inventarbestimmung transparent und nachvollziehbar sein. Die Sinnhaftigkeit der getroffenen Annahmen sollte seitens der Abfallkonditionierer von den Prozessparametern der Wiederaufarbeitung und von der Herkunft der Rohabfälle abhängig gemacht werden. In diesem Kapitel soll die Zielsetzung und simulations-technische Grundlage eines Prüfprogramms besprochen und an einigen Beispielen für die Produktkontrolle an radioaktiven Abfällen belegt werden.

### **3.1 Zielsetzung eines unabhängigen Prüfprogramms**

In der Kerntechnik werden verschiedenste Arten von Simulationsprogrammen eingesetzt. Jedes dieser Programme wird für bestimmte Aufgaben entwickelt und optimiert, wie beispielsweise der Abbrandrechnung oder der Bestimmung von Dosisleistungen. Bei der Charakterisierung komplexer Abfallgebinde aus der Wiederaufarbeitung ist es notwendig, die Resultate verschiedener Simulationsprogramme zu extrahieren, zu verdichten und zu bewerten. Um diese einzelnen Prozessschritte für die Gutachter zu erleichtern und gegebenenfalls zu automatisieren, wird im Rahmen dieser Arbeit ein Kopplungsprogramm entwickelt. Das Ziel der Software-Entwicklung ist die Erstellung eines flexiblen Programmes für die Bewertung der Inventarangaben sowie der Modellierung von Eigenschaften der für ein Endlager konditionierten radioaktiven Abfälle. Ein weiteres Ziel der Software-Entwicklung ist es ein Softwarepaket zu erstellen, welches auch für zukünftige Einsatzbereiche der Produktkontrolle Anwendung finden kann. Die Software soll flexibel gestaltet werden, um innerhalb kurzer Zeiträume neue Berechnungs- oder Prüfmethoden zu implementieren und um den Funktionsumfang einfach zu erweitern.

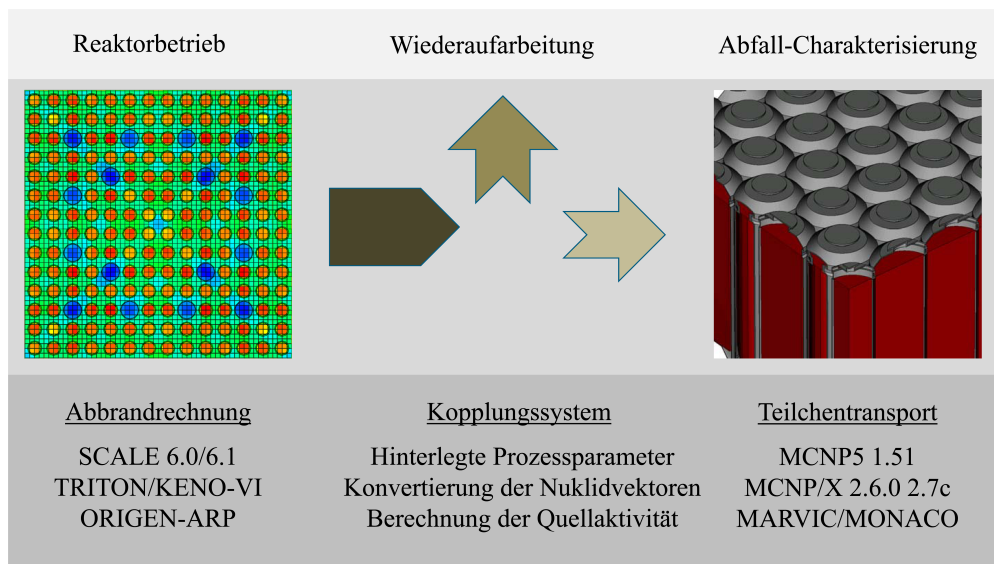


Abbildung 3.1: Konzeptionelle Darstellung eines Prüfprogramms für Abfälle aus der Wiederaufarbeitung und deren Konditionierung für ein Endlager

Die Abbildung 3.1 zeigt das erarbeitete Konzept des Prüfprogramms. Die ermittelten Eigenschaften eines Abfallgebindes sind von drei Rubriken abhängig:

- Das Verhalten der Brennelemente während der Einsatzzeit im Reaktor
- Die Abtrennung der Kernbrennstoffe in Wiederaufarbeitung und Konditionierung der Reststoffe
- Die Charakterisierung und Verifizierung radiotoxischer Eigenschaften durch nukleare Messmethoden

Um diese drei Rubriken durch ein Prüfprogramm abzubilden, ist es notwendig, unterschiedliche Simulationsprogramme der Kerntechnik automatisiert zu verarbeiten. Im ersten Schritt kommen für die Bestimmung der Eigenschaften der Rohabfälle Abbrandrechnungen zum Einsatz, welche durch numerische Verfahren die Änderung des Nuklidinventars und der Zusammensetzung während der Standzeit im Reaktor und der nachfolgenden Zeit im Abklingbecken berechnen.

Hierfür wird das modulare SCALE-Paket angewendet (Bowman, 2011). "Standardized Computer Analysis for Licensing Evaluation" (SCALE) besteht aus unterschiedlichen Funktionsmodulen, die mittels Interfacerroutinen verbunden sind. Die Funktionsmodule umfassen eine Vielzahl von Anwendungsmöglichkeiten, beispielsweise der Bestimmung der Kritikalität, Neutronen- und Photonentransportrechnungen oder der Abbrandrechnung. Die Kontrollroutine "Transport Rigor Implemented for Transient Depletion with ORIGEN" (TRITON) koppelt Neutronentransportcodes mit dem Abbrandcode ORIGEN-S, um die zeitabhängige Änderung des Nuklidinventars zu simulieren (DeHart, 2006). Die erzeugten Ergebnisse der Abbrandrechnungen werden in Binärdateien zusammengefasst (Bowman, 2011).

Der zweite Teil des Prüfprogramms ist eine Eigenentwicklung, die die Ergebnisse der Abbrandrechnungen aufgreift und weiterverarbeitet. Hierbei stellen die erzeugten Binärdateien aus den Abbrandrechnungen mittels SCALE sowohl Datenquellen als auch Schnittstellen zwischen den unterschiedlichen Programmen und Modulen dar. Das Kopplungsprogramm ist binärkompatibel sowohl mit SCALE 6.0 als auch 6.1. Zu jedem Berechnungsschritt können die Daten ausgekoppelt und beispielsweise durch ORIGEN-S weiter verarbeitet werden.

Das Kopplungssystem ist ebenso wie SCALE modular aufgebaut, um den Benutzern eine möglichst große Flexibilität zu bieten. Mittels einer Scriptsprache kann der Benutzer unterschiedliche Testfälle modular beschreiben und automatisiert prozessieren. In dem Kopplungssystem sind die Prozessparameter und Stoffeigenschaften für die unterschiedlichen Abfallströme hinterlegt. Dadurch können die übergebenen Eigenschaften der Rohabfälle entsprechend simuliert und die für den betrachteten Abfallstrom entsprechende Abfallgebinde numerisch erzeugt werden. Der dritte Aspekt des Prüfprogramms sieht die Simulation der Neutronen- und Gamma-Strahlungsfelder der ermittelten Abfallgebinde vor. Für diesen Zweck kommen unterschiedliche Simulationsprogramme zum Einsatz. Die aus dem Kopplungssystem erzeugten virtuellen Abfallgebinde werden genutzt, um automatisiert die entsprechenden Modelle für die Simulation des Teilchen- und Strahlungstransport abzuleiten. Als Simulationscodes werden hierbei MCNP5 und MCNP/X verwendet (Booth u. a., 2003).

Die Abbrandrechnung sowie die Teilchentransportsimulation liefern für sich alleine betrachtet keine Informationen über die Eigenschaften der betrachteten Abfallgebinde. Das entwickelte Kopplungssystem greift die relevanten Informationen auf und verarbeitet diese,

um daraus zu einer Einschätzung der erwarteten Produkteigenschaften zu erlangen. Um mögliche Berechnungsfehler durch schlechte oder fälschliche Parametrisierung der Modelle zu minimieren, werden sowohl für die Abbrandrechnungen als auch die Transportsimulationen Benchmarks durchgeführt, um die Ergebnisqualität mit anderen Studien zu vergleichen. Die Erläuterung der unterschiedlichen Funktionalitäten der Simulationsprogramme erfolgt im Abschnitt 3.2, die Ergebnisse der unterschiedlichen Benchmarks sind in Kapitel 5 beschrieben.

### 3.2 Verwendete Simulationsprogramme

In diesem Abschnitt werden die für das Prüfprogramm notwendigen Simulationsprogramme besprochen und deren Funktionsweise an kurzen Beispielrechnungen erläutert.

#### 3.2.1 Abbrandrechnung

Die Abbrandrechnung simuliert das Verhalten eines Kernbrennstoffs im Reaktor. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass die Abbrandrechnung lediglich die Änderung des Nuklidinventars in Abhängigkeit der Reaktorparameter beschreibt. Zusätzliche Effekte wie Nuklidendiffusion, Thermohydraulik oder chemische Veränderungen des Brennstoffs sind durch den Aufbau der Codes nicht abgedeckt. Die in Kapitel 2.2 besprochenen Brennstoffparameter werden als Modellgrößen bei der Simulation des Brennelements beachtet. Das Softwarepaket "Standardized Computer Analysis for Licensing Evaluation" (SCALE) bietet umfangreiche Möglichkeiten für die Kritikalitätsanalyse, Detektorsimulation und zeitliche Betrachtung des Nuklidinventars.

Der Aufbau der Software ist modular gestaltet, SCALE basiert auf einzelnen Funktionsmodulen, welche über vereinheitlichte Schnittstellen Berechnungsergebnisse austauschen. Die Funktionsmodule werden durch Kontrollroutinen in einer festgelegten Reihenfolge automatisiert aufgerufen, um die vom Benutzer geforderten Berechnungen auszuführen. Für die Abbrandrechnung wird die Kontrollroutine "Transport Rigor Implemented for Transient Depletion with ORIGEN" (TRITON) eingesetzt. TRITON ermöglicht automatisierte Funktionsabläufe, um das Verhalten eines Brennstoffs im Reaktorbetrieb zu ermitteln. Für die Berechnung werden problemabhängige Wirkungsquerschnittsbibliotheken erzeugt, um

die Neutronenflüsse und Reaktionsraten für die Geometrie der Simulation zu ermitteln. Die Modularität von SCALE erlaubt es dem Benutzer für die Berechnung unterschiedlicher Teilaspekte verschiedene Funktionsmodule zu verwenden. Im Fall der TRITON-Kontrollroutine kann der Benutzer beispielsweise zwischen drei verschiedenen Modulen für die Aufbereitung der Reaktionswirkungsquerschnitte sowie drei Methoden zur Berechnung der Neutronenflussverteilung wählen. Die Modellierung eines Systems kann sowohl zwei- als auch dreidimensional erfolgen.

### 3.2.1.1 Erzeugung der problemabhängigen Wirkungsquerschnitte

Die Wahl der angewendeten Wirkungsquerschnittsbibliothek beeinflusst, welches Wechselwirkungsmodul genutzt werden kann. Die in den Bibliotheken erfassten Wechselwirkungen sind nicht auf eine Geometrie der Simulation bezogen und müssen vor der Nutzung in einem Transportcode an die entsprechenden Geometrien angepasst werden. Die Wechselwirkungen sind in mehrere Energiegruppen zusammengefasst. SCALE beinhaltet die Datenbanken der ENDF-B/V, ENDF-B/VI sowie ENDF-B/VII, entweder mit 44 oder 238 Energiegruppen. Um Effekte wie die Selbstabschirmung korrekt zu berücksichtigen, muss bei der Bestimmung der problemabhängigen Wirkungsquerschnitte sowohl die Geometrie als auch die Temperatur des Brennstoffs Beachtung finden. Eine Erhöhung der Temperatur bewirkt eine Verbreiterung der Resonanzlinien, was sich wiederum auf die gemittelten Wirkungsquerschnitte auswirkt.

Für diese Verarbeitung sind drei unterschiedliche Funktionsmodule möglich:

- NITAWL (Nordheim Integral Technique)
- CENTRM (Continuous Energy Transport Module)
- 2REGION (Two Region Transport Module)

Jedes dieser Funktionsmodule passt die generischen Wechselwirkungsquerschnitte, welche in Datenbanken hinterlegt sind, an die vorliegende Geometrie an, um diese in den Neutronentransportrechnungen zu nutzen (Bowman, 2011).

Das Funktionsmodul NITAWL berechnet mittels der Nordheim-Integral-Methode den mittleren Fluss in einer Einheitszelle, die sich in zwei Zonen aufteilen lässt. Eine Zone umfasst

den Brennstoff, die zweite Zone beinhaltet den Moderator. Die durch NITAWL ermittelten Neutronenwirkungsquerschnitte beinhalten durch die starken Resonanzlinien im epithermischen Bereich hervorgerufene Effekte. Die Methodik von NITAWL bedingt einige Einschränkungen für die Anwendung dieser Methode.

Einschränkend ist, dass nur ein Resonanzmaterial angewendet wird, daher sind Effekte durch die Überlagerung von Resonanzlinien nicht zu berücksichtigen. Zudem können bei komplexeren Brennstoffgeometrien, wie Brennstoffe mit innen-liegenden Moderatoren, keine Modellierung erfolgen, da die Funktionalität von NITAWL nur zwei Zonen für die Berechnung erlaubt<sup>1</sup>. Ein weiterer Aspekt ist, dass NITAWL nur für die ENDF-B/V-Datenbanken nutzbar ist, da die Formalismen der neueren Bibliotheken inkompatibel mit der Funktionalität von NITAWL sind.

Um die konzeptionellen Hürden von NITAWL zu umgehen, bietet SCALE das CENTRM-Funktionsmodul für die Berechnung der problemabhängigen Reaktionswirkungsquerschnitte an. CENTRM löst die eindimensionale Transportgleichung für die Geometrie der Einheitszelle und ist daher von der Lösungsstrategie deutlich präziser als NITAWL, was sich jedoch auch in der benötigten Rechenzeit widerspiegelt. Im Gegensatz zu den Reaktorphysikcodes NEWT oder KENO nutzt CENTRM die kontinuierlichen Wechselwirkungsquerschnitte zur Berechnung. Erst nach Lösung des Problems wird durch das Funktionsmodul PMC aus den kontinuierlichen Wechselwirkungen und dem ermittelten Neutronenspektrum wieder eine Gruppenwirkungsquerschnittbibliothek erzeugt.

Sowohl für NITAWL als auch für CENTRM wird der Bereich der unaufgelösten Resonanzen durch den Code BONAMI verarbeitet. Das Zusammenwirken zwischen BONAMI, NITAWL und CENTRM erzeugt aus den problemunabhängigen Reaktionsquerschnitten einen an die vorliegenden Simulationsparameter angepassten Datensatz, der für die Berechnung des Neutronentransports durch einen Reaktorphysikcode genutzt wird.

CENTRM bietet auch einen reduzierten Funktionsumfang. Mittels 2REGION wird die Einheitszelle ähnlich wie in NITAWL in zwei Zonen unterteilt. Die Berechnungsgrundlage ist jedoch identisch mit CENTRM. Das Verhalten dieser drei Wechselwirkungsprozessoren wird im Abschnitt 5.1.3 im Zusammenhang mit der Berechnung eines Brennstoffinventars für hochabgebrannte Kernbrennstoffe genauer betrachtet.

---

<sup>1</sup>vgl. SCALE-Handbuch Abschnitt F2

### 3.2.1.2 Methode der Neutronenflussberechnung

Die Bestimmung der Neutronenflussverteilung in einem Brennstoff, Brennelement oder Reaktorkern erfolgt mittels Neutronentransportcodes. Diese Programme lassen sich von ihrer Herangehensweise in zwei Konzepte unterteilen. Zum einen in die deterministischen Programme, hierbei wird die zu simulierende Geometrie in kleinere Zellen zerteilt. Für jede dieser Zellen wird unter Berücksichtigung der Randbedingungen die Lösung der Boltzmann-Transportgleichung ermittelt. In SCALE wird dies durch das Funktionsmodul NEWT erreicht (DeHart, 2009). Die Lösung der Boltzmann-Transportgleichung lässt sich darüber hinaus auch durch die Simulation einzelner Teilchenhistorien ermitteln. Programme wie MCNP oder KENO bestimmen mittels einer Vielzahl von Teilchenhistorien die mittleren Neutronenflüsse innerhalb der Geometrie des Modells. In den deterministischen Codes wird der Neutronenfluss berechnet, bis die Verteilung für das gesamte Modell konvergiert und die relativen Fehler unter einem voreingestellten Schwellwert liegen. Im Falle des Monte-Carlo-Verfahrens kann es in Randbereichen mit einer geringeren Flussdichte, auf Grund der Zählstatistik, zu höheren Unsicherheiten der Flussberechnung kommen. Dies führt in der weiteren Prozesskette zu Unsicherheiten in der Nuklidbestimmung. Dies ist ein prinzipielles Phänomen der Monte-Carlo-Berechnungen und kann nur durch geeignete Maßnahmen, wie beispielsweise Importance-Sampling oder andere Methoden zur Varianzreduktion gemindert werden (Sweezy, 2008). Auf die unterschiedlichen Methoden zur Neutronenflussbestimmung wird im Verlauf dieses Abschnitts eingegangen.

Für die Berechnung der Kritikalität des Systems, der Neutronenflussverteilung sowie der Reaktionsraten kann bei Anwendung der TRITON-Kontrollroutine zwischen drei unterschiedlichen Neutronentransportcodes ausgewählt werden. TRITON<sup>2</sup> kann sowohl mit dem deterministischen Transportcode NEWT als auch dem auf Monte-Carlo-Methoden basierenden Codes KENO-V und KENO-VI zusammenarbeiten. Der Programmablauf und die Übergabe der Zwischenergebnisse wird durch TRITON entsprechend angepasst. Der Programmablauf einer Abbrandrechnung mittels TRITON ist in Abbildung 3.2 schematisch dargestellt.

Die Algorithmen dieser Funktionsmodule unterscheiden sich in ihren Ansätzen deutlich. Beide Module lösen die Boltzmann-Transportgleichung (Beckurts u. Wirtz, 1964), jedoch mit unterschiedlichen Verfahren. Die Transportgleichung kann in unterschiedlichen Formen

---

<sup>2</sup>TRITON Transport Rigor Implemented with Time-dependent Operation for Neutronic depletion



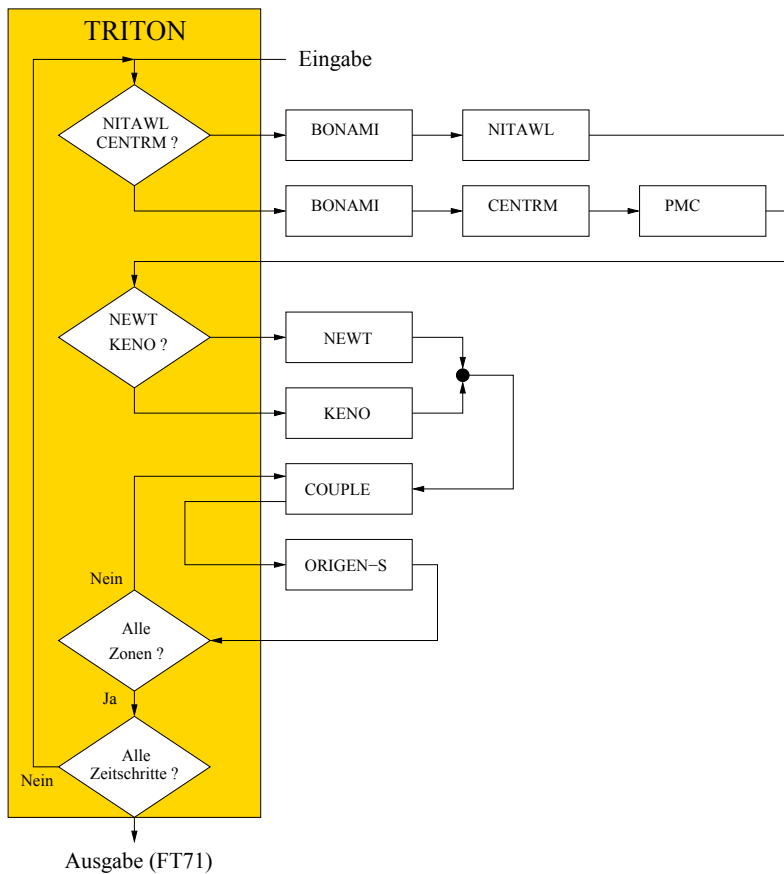


Abbildung 3.2: Programmablaufplan einer Abbrandrechnung mittels TRITON ((DeHart, 2009), eigene Darstellung)

und Vereinfachungen dargestellt werden. Für die Anwendung in der Reaktorphysik ist folgende Darstellung gebräuchlich:

$$\hat{\Omega} \nabla \psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) + \sigma_t(\vec{r}, E) \psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) = Q(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) \quad (3.1)$$

Hierbei sind  $\psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, E)$  der winkel-abhängige Neutronenfluss an Position  $\vec{r}$  in Richtung des Raumwinkels  $\hat{\Omega}$  und Energie  $E$ . Der Ausdruck  $\sigma_t(\vec{r}, E)$  bezeichnet den gesamten makroskopischen Reaktionsquerschnitt an Position  $\vec{r}$  und Energie  $E$ .  $Q(\vec{r}, \hat{\Omega}, E)$  bezeichnet den Quellterm. Dieser Term kann in drei Anteile zerlegt werden:

Streuung von einem beliebigen Energie- und Winkelbereich nach  $\hat{\Omega}, E$ :

$$S(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) = \int_{4\pi} \int_0^\infty \sigma_s(\vec{r}, \bar{\Omega} \rightarrow \hat{\Omega}, \bar{E} \rightarrow E) \psi(\vec{r}, \bar{\Omega}, \bar{E}) d\bar{E} d\bar{\Omega} \quad (3.2)$$

Hierbei entspricht  $\sigma_s(\vec{r}, \bar{\Omega} \rightarrow \hat{\Omega}, \bar{E} \rightarrow E)$  der Wahrscheinlichkeit, dass durch einen Streuprozess ein Neutron an Position  $\vec{r}$  von Raumwinkelbereich  $\bar{\Omega}$  und Neutronenenergie  $\bar{E}$  in den Raumwinkelbereich  $\hat{\Omega}$  und Energie  $E$  gelangt. Die durch Spaltung erzeugten Neutronen entsprechen dem zweiten Anteil der Quellstärke:

$$F(\vec{r}, \hat{\Omega}, E) = \chi(\vec{r}, E) \int_0^\infty \nu(\vec{r}, \bar{E}) \sigma_f(\vec{r}, \bar{E}) \psi(\vec{r}, \hat{\Omega}, \bar{E}) d\bar{E} \quad (3.3)$$

Hierbei entspricht  $\nu(\vec{r}, \bar{E})$  der Anzahl an Neutronen, die während der Spaltung an Position  $\vec{r}$  und Energie  $\bar{E}$  freigesetzt werden.  $\sigma_f(\vec{r}, \bar{E})$  entspricht hierbei dem Spaltquerschnitt an Position  $\vec{r}$  und Energie  $\bar{E}$ .

Der dritte Anteil umfasst eine mögliche externe oder konstante Quelle.  $S(\vec{r}, E)$ .

Generell ist diese Gleichung nur für einfache Geometrien und idealisierte Fälle direkt analytisch lösbar. Daher werden numerische Approximationen zur Lösung von Gleichung 3.1 verwendet. Die vollständige Herleitung der unterschiedlichen Ansätze ist an dieser Stelle ausgenommen, vgl. (DeHart, 2009), daher werden an dieser Stelle nur die generellen Unterschiede der Codes NEWT und KENO angesprochen.

Der deterministische Ansatz von NEWT zerlegt die Geometrie eines Brennstabs oder Brennelements in mehrere Zellen. Gekrümmte Oberflächen können nur approximativ mit Polygonzügen beschrieben werden. Daher werden in der zweidimensionalen Modellierung

von NEWT Zylinder durch vielseitige Polygone angenähert. Eine Unterteilung in zu kleine Berechnungszellen führt für NEWT zu erheblich längeren Rechenzeiten, da die Anzahl an Zellen näherungsweise quadratisch in die Rechenzeit eingeht. Diese feine Diskretisierung ist jedoch meist nicht notwendig, da die mittleren, freien Weglängen eines Neutrons im Bereich von mehreren Zentimetern liegen (Lamarsh u. Baratta, 2001).

Die diskretisierte Geometrie dient als Grundlage für die Berechnung des Neutronenflusses. NEWT nutzt hierfür die Implementierung der iterativen "Extended Step Characteristic" (ESC)-Methode, vgl. (DeHart, 2006). Die Methode basiert auf zwei Annahmen. Zum einen sind die Wechselwirkung und Quellterme innerhalb einer Zelle konstant, zum anderen ist eine Zelle durch gerade Linien begrenzt, daher die Einschränkung auf Polynome als Zellgeometrien. Um zu gewährleisten, dass die Annahmen gültig sind, dürfen die Flächen der Zellen nicht zu groß werden. Hierfür nutzt NEWT ein durch den Benutzer vorgegebenes Gitter, welches die einzelnen Polygone schneidet, um so weitere verkleinerte Zellen für die Flussberechnung zu erhalten.

Jede Begrenzungsfläche eines Polygons ist entweder selbst wieder mit einer Begrenzungsfläche eines benachbarten Polygons oder einer Außengrenze des Modells verbunden. Für jede diskrete Richtung werden die Flüsse auf den Begrenzungsflächen der Polygone iterativ ermittelt. Hierbei geht das Programm von einer gegebenen Fläche aus, typischerweise einer Außenfläche des Modells, entlang der vorgegebenen Richtung durch alle Zellen des Modells. Dieses Vorgehen wird so lange wiederholt, bis alle Flüsse entlang der vorgegebenen Richtung bekannt sind. Im Anschluss wird dieses Verfahren für alle übrigen Richtungen wiederholt. Nach Abschluss der Berechnungen ist eine Schätzung des winkel-abhängigen Neutronenflusses für alle Zellen bestimmt. Aus diesen Werten lässt sich durch numerische Integration der mittlere Neutronenfluss innerhalb einer Zelle bestimmen. Dieser Wert dient sowohl für die Ermittlung der Reaktionsraten der unterschiedlichen Materialien in der Zelle, als auch für die Bestimmung der Quellterme. Für die gefundene Lösung werden nun die Flüsse für alle Richtungen neu bestimmt. Dieses iterative Verfahren wird so lange fortgesetzt, bis die Änderung der Flussverteilung unterhalb einer eingestellten Toleranz liegt. Die Herleitung der Diskretisierungsmethode kann beispielsweise dem SCALE-Handbuch entnommen werden, vgl. (DeHart, 2009).

Im Gegensatz zu den deterministischen Verfahren von NEWT basiert KENO auf der Monte-Carlo-Methode zur Lösung der Boltzmann-Transportgleichung. KENO simuliert

den Transport einzelner Neutronenhistorien im Modell des Brennelements. Die Geometrie muss im Gegensatz zu NEWT nicht durch Polygone angenähert werden und unterstützt auch die dreidimensionale Modellierung des Systems. Aus den mittleren Eigenschaften der berechneten Teilchenhistorien werden die Flüsse und Reaktionsraten abgeleitet. Das Berechnungsverfahren von KENO ist mit dem von MCNP vergleichbar, daher erfolgt die genauere Beschreibung der Methodik zusammen in Abschnitt 3.2.3.

### 3.2.2 Berechnungsverfahren von ORIGIN-S

Die Bezeichnung ORIGIN (Oak Ridge Isotope Generator) steht stellvertretend für eine ganze Familie von Programmen, die zur Berechnung des zeitabhängigen Nuklidinventars eingesetzt werden. In Abbildung 3.3 sind die unterschiedlichen ORIGIN-Versionen und deren Ableitungen dargestellt. Die Berechnungsmethode in ORIGIN-S aus dem SCALE-Paket blieb seit der Veröffentlichung von ORIGIN im Jahre 1973 im Wesentlichen unverändert. Lediglich Teilaspekte wurden optimiert. Die zugrundeliegenden Zerfallsbibliotheken unterscheiden sich jedoch recht deutlich in Ihrer Qualität. Eine Studie der NEA zeigte, dass bereits beim Wechsel von SCALE 6.0 auf SCALE 6.1 die Halbwertszeiten einiger Nuklide sich teilweise um mehrere Größenordnungen unterscheiden (Radulescu u. Wagner, 2011). Der folgende Abschnitt zeigt das generelle Lösungsverfahren, wie es in den von ORIGIN abgeleiteten Softwareprodukten Anwendung findet (Parks, 1992). Im Rahmen dieser Arbeit wird die Funktionalität von ORIGIN-S aus den SCALE-6.0 und SCALE-6.1 Paketen angewendet. Hauptunterschied zwischen diesen ORIGIN-S Varianten ist, dass im Fall von SCALE-6.0 die Halbwertszeiten und Nuklidaten aus der ENDF-VI stammen, wohingegen bei SCALE-6.1 bereits auf die neuere ENDF-VII gewechselt wurde.

Die Berechnung des zeitabhängigen Nuklidinventars wird von ORIGIN durch die Anwendung unterschiedlicher numerischer Algorithmen gelöst. Die Anwendung und Unterteilung der Methoden erfolgt über die Halbwertszeit der betrachteten Nuklide. Das analytische Modell von ORIGIN umfasst ein gekoppeltes, lineares Gleichungssystem erster Ordnung mit linearen Koeffizienten, vgl. Kapitel 6. Ein solches System kann in der Matrixschreibweise folgendermaßen definiert werden:

$$\dot{\underline{N}} = \underline{A} \times \underline{N} \quad (3.4)$$



geachtet werden. Durch die begrenzte Rechengenauigkeit kommt es bei der Anwendung dieser Methode zu einem Informationsverlust. Daher werden Radionuklide mit einer kurzen Halbwertszeit separat betrachtet, um die Genauigkeit der Methode nicht zu verlieren. Kurzlebige Nuklide, deren Halbwertszeiten weniger als 10 % des betrachteten Zeitintervalls betragen, werden aus der Systemmatrix entfernt.

Die direkte Lösung des gekoppelten Systems würde zu hohem Speicherbedarf führen, daher wird für die Lösung ein iteratives Verfahren genutzt. Neben der aktuellen Lösung für ein Nuklid muss nur der Vektor  $C_i$  vorliegen:

$$N_i(t) = \sum_{n=0}^{\infty} C_i^n \quad (3.8)$$

Durch die Anwendung der rekursiven Bedingung leitet sich ab:

$$\begin{aligned} C_i^0 &= N_i(0) \\ C_i^{n+1} &= \frac{t}{n+1} \sum_{j=1}^N a_{ij} C_j^n \end{aligned} \quad (3.9)$$

Hierbei entspricht  $N(t)$  der Konzentration des betrachteten Nuklids zum Zeitpunkt  $t$  und  $a_{ij}$  dem Übergangskoeffizienten aus der Systemmatrix. Dieser Faktor beschreibt den Beitrag zur Bildung von Nuklid  $i$  aus Nuklid  $j$ . Die Parametrisierung der Lösungsmethode ist dem SCALE-Handbuch entnommen.

Die entfernten Nuklide müssen getrennt verarbeitet werden. Die Lösung beinhaltet auch den Fall, dass die Nuklide einer Zerfallskette angehören. Hierzu wird am Ende eines Zeitintervalls die Lösung der Bateman-Gleichung berechnet, welche die Konzentration der kurzlebigen Nuklide, die sich in einer Zerfallskette befinden, bestimmt.

Die Bateman-Gleichung für das  $i$ -te Nuklid in einer Zerfallskette ist gegeben durch:

$$N_i = N(0) \exp(-d_i t) + \sum_{k=1}^{i-1} N_k(0) \left[ \sum_{j=k}^{i-1} \frac{\exp(-d_j t) - \exp(-d_i t)}{d_i - d_j} a_{j+1,j} \prod_{n=k, n \neq j}^{i-1} \frac{a_{n+1,n}}{d_i - d_j} \right] \quad (3.10)$$

$N_k(0)$  entsprechen den anfänglichen Nuklidkonzentrationen.

Ein weiteres Lösungsverfahren kommt für den Fall zum Einsatz, dass ein kurzlebiges Nuklid von einem langlebigen Vorfahren entstammt. Als Annahme dient hierbei, dass die Toch-

ternuklide am Ende eines Zeitschritts mit den Vorfahren im Gleichgewicht stehen. Daher ist die Änderung der Tochternuklide ausschließlich durch die Änderung der Vorfahren abhängig.

Für jeden Zeitschritt löst ORIGEN durch Anwendung der bezeichneten Algorithmen die gekoppelte Differentialgleichung. Der Hauptunterschied in der Berechnung zwischen Zerfalls- und Abbrandrechnung ist, dass im Fall der Abbrandrechnung zusätzlich zu den Übergangskoeffizienten des radioaktiven Zerfalls auch die  $a_{ij}$ -Faktoren für Neutronenreaktionen beachtet werden.

### 3.2.3 Modellierung des Teilchentransports

Die Lösung des Teilchentransportproblems ist nur durch Einschränkung der Allgemeinheit, beispielsweise durch Vereinfachung der Problemgeometrie, direkt analytisch lösbar. Um den Teilchentransport in einer komplexen Geometrie, sei es bei der Simulation des Brennelementverhaltens während des Abbrands oder eines Detektorsystems für die Charakterisierung von radioaktiven Abfällen, zu lösen, kommen unterschiedliche numerische Verfahren in Betracht. Die deterministische Methode zerlegt die Geometrie in kleinere Elemente, in denen ein konstanter Teilchenfluss und Materialzusammensetzung angenommen werden. Diese Methode wird im Abschnitt 3.2.1 am Beispiel der Software NEWT beschrieben.

Ein häufig gewählter Ansatz für die Lösung des Teilchentransportproblems ist die Anwendung der Monte-Carlo-Simulation. Dieses statistische Verfahren ermittelt die Verteilung der Teilchenpopulation in der Geometrie aus einer Vielzahl von unabhängig simulierten Teilchenhistorien. Je nach Ausprägung der Software können sowohl diskrete als auch kontinuierliche Energien betrachtet werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurden unterschiedliche Monte-Carlo-basierte Teilchentransportcodes eingesetzt. KENO-V.a und KENO-VI sind zwei Funktionsmodule des SCALE-Programmpakets (Bowman, 2011). Diese Programme sind auf die Simulation der Neutronenverteilung ausgelegt. Die Berechnung der Flussverteilung und den einhergehenden Reaktionsraten ist derzeit aufgeteilt auf bis zu 238 Energiegruppen. Die Codes erlauben ausschließlich die Betrachtung des Neutronentransports, da diese den dominierenden Beitrag zur Änderung des Nuklidinventars während des Einsatzzeitraums eines Brennelements im Kernreaktor liefern.

Für die Simulation von  $\gamma$ -Strahlungsfeldern eignen sich die Programme MCNP5 oder auch MCNP/X. Beide Programme sind von dem ursprünglichen MCNP4 abgeleitet und werden am Los Alamos National Laboratory entwickelt. Da die Codes von unterschiedlichen Arbeitsgruppen mit verschiedener thematischer Ausrichtung weiterentwickelt werden, haben sich die Codes seit MCNP4 in unterschiedliche Richtungen entwickelt. MCNP/X steht für "MCNP Extended" und deutet an, dass der ursprüngliche Funktionsumfang des Codes erweitert wurde. Die Versionen MCNP4 und MCNP5 erlauben den Transport von Elektronen, Photonen sowie Neutronen. Durch die Anwendung von physikalischen Modellen können in MCNP/X auch Protonen sowie Ionen simuliert werden. Zukünftig soll die Entwicklung dieser beiden Simulations-Codes wieder in das Produkt MCNP6 zusammengeführt werden (Goorley u. a., 2011). Die Methodik des Teilchentransports und die Ermittlung der Flüsse und Reaktionsraten sind für alle angesprochenen Codes vergleichbar und werden im Folgenden am Beispiel von MCNP5 erläutert.

Die Grundstruktur einer MCNP5-Eingabedatei ist in drei Bereiche unterteilt:

- Zellendefinition: Beschreibung der Volumina der Geometrie bzw. einer Materialzelle
- Oberflächen: Spezifikation der Oberflächen, die in der Geometrie vorkommen
- Simulationsdaten: Z.B. Quellverteilungen, Detektoren, Historienanzahl

Jeder Eintrag in der Eingabedatei wird als "Card" bezeichnet, die gesamte Datei wiederum als "Deck". Diese Bezeichnung spielt auf die Vergangenheit von MCNP an, in der die Simulationen noch per Lochkarten definiert wurden (Booth u. a., 2003).

Die Spezifikation der Geometrie einer MCNP-Simulation basiert auf der Anwendung der konstruktiven Festkörpergeometrie, im englischen Sprachraum auch als "Constructive Solid Geometry" (CSG) bezeichnet. Durch die Anwendung von Boole'schen Operatoren werden die definierten Oberflächen miteinander verknüpft, um die eingeschlossenen Volumina eindeutig zu beschreiben. MCNP bietet als Oberflächen neben einfachen Ebenen, Zylindern und Konen auch aufwändigere Oberflächen wie Ellipsen oder Tori. Für jeden Oberflächentyp ist eine Oberflächengleichung hinterlegt. Ein räumlicher Punkt exakt auf der Oberfläche besitzt den Funktionswert 0. Abhängig davon, wo sich ein beliebiger Koordinatenpunkt relativ zur betrachteten Fläche befindet, ist die Funktionsgleichung positiv oder negativ im Vorzeichen. Das Vorzeichen gibt Auskunft darüber, ob sich ein Punkt beispielsweise ober-



```

1 10 1 -5.0 10 -20 -30 IMP:n=1
   20 0 -10:20:30 IMP:n=0

10 PZ 0
20 PZ 115
6 30 CZ 19.5

```

Abbildung 3.4: Ausschnitt einer Eingabe eines zylinderförmigen Objekts in MCNP

halb oder unterhalb einer Ebene befindet. Diese Funktionswerte werden durch die Boole'schen Operationen miteinander verknüpft und erzeugen so die Definition von eindeutig bestimmten Volumina. Als Beispiel für dieses Vorgehen wird an dieser Stelle die Definition eines räumlich begrenzten Zylinders dargestellt. Ein Zylinder kann in drei Oberflächen zerlegt werden: die oberen und unteren Ebenen sowie die unendliche Zylinderoberfläche. Die Abbildung 3.4 zeigt die Eingabe-Karten für die Simulation. Die Definition von Zelle 10 besagt, wie in Zeile 1 dargestellt, dass diese Zelle mit Material 1 und der Dichte von  $5.0 \text{ g/cm}^3$  befüllt ist. Ein Leerzeichen zwischen den Zellen entspricht der Und-Verknüpfung. Somit lässt sich die erste Zeile als das Volumen oberhalb von Ebene 10, unterhalb Ebene 20 und innerhalb Zylinder 30 definieren. Durch die Anwendung der Boole'schen Verknüpfung mit den Oberflächengleichungen definiert man das Volumen eindeutig. Das Volumen außerhalb des Zylinders ist in Zeile 2 beschrieben, hierbei soll das Volumen durch Vakuum befüllt sein. Die Objektgeometrie entspricht genau der Umkehrung des Zylinders. Alle Bereiche unterhalb Ebene 10 sowie alles oberhalb von Ebene 20 sowie auch alles außerhalb von Zylinder 30 gehören zu diesem Volumen. Diese Volumendefinition wird durch eine Oder-Verknüpfung erreicht, die in MCNP als Doppelpunkt symbolisiert wird. Jedoch sind in MCNP keine unendlich großen Volumina erlaubt, daher muss eine Teilchenhistorie, die dieses Volumen erreicht, abgebrochen werden. Dies wird durch das Prinzip der "Importance" erreicht. Die Importance gibt eine vom Benutzer festgelegte Gewichtung für die Zellen an. Die Bezeichnung IMP:n=0 deutet an, dass die Importance in einer Zelle Null entspricht. Damit ist für den Programmablauf von MCNP festgelegt, dass alle Historien, die diese Zelle erreichen, beendet werden. Für jede MCNP Simulation, die nicht mit reflektierenden Oberflächen arbeitet, muss eine Zelle das System räumlich abschließen. Neben den Und- bzw. Oder-Verknüpfungen von Oberflächen sind auch Nicht-Verknüpfungen von Zellen möglich, diese eignen sich beispielsweise dazu, aus einem Volumen Bereiche zu entfernen, die als separate Zelle betrachtet werden müssen. Diese Technik kommt bei der Modellierung von kompaktierten Abfällen zum Einsatz.

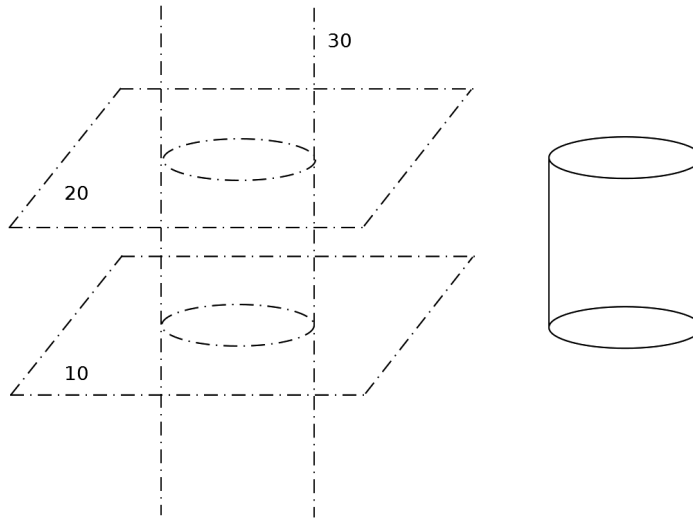


Abbildung 3.5: Links: Drei Oberflächen des Zylinders. Rechts: Zylindervolumen nach boole'schen Operationen

Neben den Oberflächen und Zellen müssen auch die Materialien der Zellen definiert werden. Hierzu sieht MCNP vor, dass die in einem Material vorkommenden Elemente bzw. Nuklide in Form einer Liste definiert werden. Die Bestandteile des Materials werden durch den ZAID-Code<sup>3</sup> beschrieben, welcher in ähnlicher Form auch bei SCALE Anwendung findet, vgl. Abschnitt 3.3. Die Zusammensetzung der Materialien erfolgt entweder in Gewichts- oder Atomprozent. Eine Mischung dieser Angaben innerhalb eines Materials ist nicht erlaubt.

Die Verteilung der Startpunkte der Teilchen sowie deren initiale Starteigenschaften sind von großer Bedeutung für die korrekte Bestimmung der zu ermittelnden Eigenschaften. Mittels MCNP können auch beliebig komplexe Quelleigenschaften spezifiziert werden. Daher werden durch das entwickelte Kopplungssystem, welches in Abschnitt 3.5 näher beschrieben ist, die Quelleigenschaften eines Abfallgebundes automatisiert generiert. Alle Eigenschaften der Startteilchen lassen sich durch die Anwendung von Verteilungsfunktionen beschreiben. Für eine ausführliche Beschreibung sei auf das MCNP-Handbuch verwiesen (Booth u. a., 2003).

<sup>3</sup>Der ZAID-Code setzt sich zusammen aus Kernladungszahl Z, Massezahl A, sowie einer ID für metastabile Zustände.

Für die simulierten Abfallgebinde wird im vorliegenden Fall hauptsächlich auf die Zylinder-Geometrie zurückgegriffen. Für jede Zone in der Teilchen starten können, müssen mindestens drei Parameter der Teilchenquelle hinterlegt sein. Der Ursprung der Zelle dient als Bezugspunkt für die weiteren Verteilungen. Dieser ist auf das axiale Zentrum einer Zelle festgelegt. Des Weiteren muss angegeben werden, welche Ausdehnung die betrachtete Zelle in axialer Richtung besitzt. Die dritte Information bezieht sich auf den Radius der Zone. Jede dieser drei Verteilungen wird durch eine Pseudozufallszahl abgetastet und so eine konkrete zufallsbedingte Position ermittelt. Befindet sich die Position innerhalb des betrachteten Volumens, wird diese Position als Startpunkt der Teilchenhistorie festgelegt. Im Folgenden wird die Energieverteilung für die betrachtete Zelle ermittelt. Die Materialzusammensetzung legt das Quellspektrum fest. Die betrachteten  $\gamma$ -Linien werden durch das Kopplungssystem automatisch aus der Materialmixture des Quellspektrums abgeleitet, vgl. Abschnitt 3.5. Diese erzeugten Spektren sind so normiert, dass die vorkommenden  $\gamma$ -Linien der unterschiedlichen Radionuklide in den exakten Relationen auftreten. Um sowohl die Relation der  $\gamma$ -Linien untereinander in den jeweiligen Zellen, als auch das Verhältnis der Zellen untereinander zu erhalten, wird gleichzeitig die relative Häufigkeit aller  $\gamma$ -Linien in allen betrachteten Zellen ermittelt. Somit ist für jede Zelle die Wahrscheinlichkeit festgelegt, mit der eine Teilchenhistorie aus dieser Zelle startet.

Die Ergebnisse der Monte-Carlo-Simulationen werden durch Zähler, im Englischen als "Tallies" bezeichnet, ermittelt. Diese Zähler summieren beispielsweise die Weglänge eines Teilchens durch ein betrachtetes Volumen oder den Teilchenfluss durch eine Oberfläche. Alle Tallies in MCNP sind standardmäßig normiert auf ein Startteilchen. Daher sind die Ergebnisse der Tallies angegeben als Fluenz [ $1/\text{cm}^2$ ]. Durch die Anwendung von Multiplikatoren können die Ergebnisse der Zähler auf die simulierte Quellstärke normiert werden. Ist die Quellstärke einer Simulation angegeben in Photonen pro Sekunde, so ist das normierte Ergebnis der Zähler angegeben in: [ $\text{p}/\text{cm}^2/\text{s}$ ]. Demnach ist das Ergebnis der ermittelte Winkel- und Energie-unabhängige Photonenfluss. Die Berechnung der Weglänge ist eine der am häufigsten angewendeten Methoden für die Berechnung der Flussverteilung in MCNP. Das Ergebnis eines Weglängenzählers (F4-Zähler) ist gegeben durch:

$$F4 = \frac{1}{V_{\text{Zelle}}} \int_V \int_t \int_E \phi(\vec{r}, E, t) dE dt dV = \frac{1}{V_{\text{Zelle}}} \int_V \int_s \int_E n(\vec{r}, E, t) dE ds dV = \frac{T_L}{V_{\text{Zelle}}} \quad (3.11)$$

Der Teilchenfluss  $\phi(\vec{r}, E, t)$  kann aufgeteilt werden in die Teilchenpopulation  $n(\vec{r}, E, t)$

sowie die Geschwindigkeit in Abhängigkeit der Energie  $v(E)$  (Sweezy, 2008).  $V_{Zelle}$  ist das Volumen der Zelle, die als Zähler (Tally) dient. Durch den Zusammenhang, dass die Streckenänderung pro Zeit die Geschwindigkeit der Teilchen darstellt,  $v = \frac{ds}{dt}$ , lässt sich aus der Summe der Weglängen der einzelnen Trajektorien, die das betrachtete Volumen der Zelle schneiden, der integrierte Teilchenfluss bestimmen.

Aus den ermittelten Flüssen lässt sich auch die Reaktionsrate bestimmen. Hierbei gilt:

$$R_i^x = \int_0^\infty N^i(\vec{r}, t) \sigma_i(E) \phi(\vec{r}, E, t) dE \quad (3.12)$$

Dabei sind  $R_i^x$  die Reaktionsrate für Nuklid  $i$  und Prozess  $x$ ,  $\sigma_i(E)$  der energieabhängige Reaktionsquerschnitt für den Prozess  $x$  in Nuklid  $i$  (Sweezy, 2008). In MCNP lässt sich diese Berechnung durch die Anwendung der Multiplikatorkarte (FM-Card) durchführen. Hierbei wird der entsprechende Zähler mit einer energieabhängigen Funktion gewichtet:

$$F4_x = \frac{C}{V_{Zelle}} \int_V \int_t \int_E \Sigma_x(E) \phi(\vec{r}, E, t) dE dt dV \quad (3.13)$$

Das Ergebnis des gewichteten Zählers ist die geschätzte Reaktionsrate für den Prozess  $x$  im Volumen  $V_{Zelle}$ . Die Neutronenwirkungsquerschnitte entstammen den MCNP beigefügten ENDF-Bibliotheken.

Ein ähnliches Prinzip findet bei der Berechnung der Dosisleistung Anwendung. Hierbei werden jedoch keine Multiplikatorkarten genutzt, sondern ein artverwandtes Vorgehen. MCNP nutzt Dosisfunktionen, um aus der ermittelten Flussverteilung die Dosisleistung zu ermitteln. Hierbei werden energieabhängige Dosiskonversionsfaktoren angewendet, um die Dosis-Leistung zu bestimmen. Die angewendeten Konversionsfaktoren entstammen der ICRP-Richtlinie 74 (ICRP, 1997). Das Verfahren ist in drei Abschnitte gegliedert. Zum einen wird mittels des F4-Zählers die Fluenz in einer Zelle bestimmt. Durch die Multiplikatorkarte wird die Fluenz auf die Quellstärke normiert, die Konversionsfaktoren gewichten das Spektrum mit dem relativen Schädigungspotential der betrachteten Strahlungsart.

### 3.3 Software-Entwicklung

Die Software-Entwicklung des Kopplungssystems stellt den zentralen Kern des Prüfprogramms dar. Um das Design der Software an die Nutzergruppe anzupassen, sind folgende Anforderungen einzuhalten:

1. Kompatible Schnittstellen zu den Simulationsprogrammen
2. Flexible Erweiterungsfähigkeit der Software für zukünftige Abfallströme und Prüfaufgaben
3. Automatisierung der Generierung von MCNP-Modellen zur Berechnung von Dosisleistungen in Abhängigkeit der Konditionierungsform und Nuklidinventar
4. Implementierung von häufig verwendeten Auswerteroutinen wie beispielsweise der Vergleich von deklarierten und berechneten Nuklidinventaren
5. Verwendung einer zukunftssicheren Programmiersprache
6. Anwendung von Open-Source-Produkten zur Vermeidung von Lizenzkosten
7. Effiziente Simulationsberechnungen

Aus diesen sieben Kernpunkten leiten sich die Anforderungen an die Struktur der Software ab.

Die Schnittstellenkompatibilität zwischen dem Kopplungsprogramm und den Simulationscodes ist notwendig, um auch Zwischenergebnisse des Kopplungssystems wieder zurück an die Simulationsprogramme zu übergeben.

Einige Simulationscodes, wie MCNP5 oder MCNP/X, lassen sich komplett durch die Parametrierung der ASCII-Eingabedatei steuern. Andere Codes, wie beispielsweise SCALE, benötigen neben den Eingabedaten zusätzliche Informationen, welche in Binärdateien hinterlegt sind. Für diesen Zweck eignet sich die Implementierung kompatibler Interfaces für die gespeicherten Binärdaten des SCALE-Pakets.

Die als "FT71" bezeichneten Binärdateien des SCALE-Pakets umfassen für jeden Zeitschritt einer Abbrandrechnung das gesamte Nuklidinventar. Die unterschiedlichen Nuklide sind als Stoffmenge in der Binärdatei gespeichert. Darüber hinaus kann die Datei das  $\gamma$ -

oder Neutronenspektrum sowie weitere Zusatzinformationen, wie Abbrand, Neutronenfluss oder spezifische Leistung der Abbrandmaterialien enthalten.

Somit stellen die "FT71"-Dateien eine Schnittstelle für den Import bzw. Export detaillierter Informationen der zeitabhängigen Nuklidkonzentrationen aus SCALE in das Kopplungssystem dar. Die Bezeichnung FT71 entstammt noch aus den ersten Versionen von SCALE. Die Dateinummer 71 war für die Speicherung von Nuklidkonzentrationen gedacht, die Bezeichnung FT71 hat sich bis in die heutigen Versionen von SCALE gehalten.

Um die Software modular zu gestalten, eignet sich eine objekt-orientierte Sprache. Hierbei wird ein komplexes Problem in kleinere Module zerlegt, die klar definierte Eigenschaften und Schnittstellen aufweisen. Aus diesen Informationen werden nach dem Designprozess bei der Implementierung die entsprechenden Klassen abgeleitet.

Häufig genutzte Analysefunktionalitäten werden direkt im Kopplungssystem oder dessen Hilfsklassen hinterlegt. Dies reduziert den Aufwand den ein Gutachter betreiben muss, um neue Analysen zu implementieren. Während die Aufarbeitung der notwendigen Daten in den hinterlegten Funktionen stattfindet, wird lediglich das erwünschte Endergebnis an den Benutzer zurückgeliefert. Die Berechnungsroutinen sind in C++-Klassen organisiert. Dies ermöglicht eine Trennung zwischen den Daten und den Ergebnissen an denen der Benutzer interessiert ist. Die Trennung unterstützt die Testbarkeit der Software.

Die vierte und fünfte Bedingung lassen sich in einem Kontext betrachten. Für die Lösung der bisherigen Anforderungen an das Prüfprogramm stehen unterschiedliche Programmiersprachen und Systeme zur Auswahl. Um die Wahl einzugrenzen wird gefordert, dass aus den ermittelten Daten direkt graphische Auswertungen zu erzeugen sind. Hierfür bietet sich das Open-Source-Programm ROOT an, welches am CERN entwickelt wurde und auch weiterhin aktiv weiterentwickelt wird<sup>4</sup>. Dies ist eine wichtige Voraussetzung für die Portierbarkeit und Zukunftssicherheit des entwickelten Kopplungssystems.

Die Software ist eine objekt-orientierte Klassenbibliothek für die Auswertung der unterschiedlichen Experimente des CERN, bietet aber auch für andere Forschungsbereiche ausgezeichnete Methoden der komplexen Datenauswertung. Die graphischen Funktionalitäten umfassen sowohl ein- oder mehrdimensionale Histogramme als auch Graphen, die an die eigenen Anforderungen angepasst werden können.

---

<sup>4</sup>ROOT-Webseite: <http://root.cern.ch> - Stand Juli 2014

ROOT ist der Nachfolger der "Physics Analysis Workstation" (PAW) (Bock u. a., 1987), welche auf der Programmiersprache FORTRAN basierte. Die ROOT-Entwickler begründeten den Schritt einer Neuentwicklung in einer objekt-orientierten Programmiersprache damit, dass die notwendige Komplexität der Software nur unzureichend durch FORTRAN abzudecken ist (Antcheva u. a., 2009). Daher ist die gesamte Software in C++ geschrieben. Die ROOT-Software wird unter der "Lesser General Public License" (LGPL) veröffentlicht. Dies erlaubt den Einsatz der Software auch in proprietären Projekten, wenn die LGPL-Lizenz durch die Software mitgeliefert wird und die durch die LGPL geschützten Codebereiche lediglich dynamisch zur Laufzeit des Programms aus den Bibliotheken geladen werden (Paul, 2005).

Die abschließende Bedingung ist auch auf ROOT anzuwenden. ROOT beinhaltet den C++-Interpreter CINT, der den C++-Code auswertet und die angeforderten Funktionalitäten ausführt. Die Funktionalität von ROOT lässt sich durch eigene C++-Klassen erweitern. Hierbei werden die benötigten Funktionen und Klassen in "Shared Libraries" zusammengefasst. Diese Bibliotheken lassen sich zur Laufzeit des Programms dynamisch laden und die darin beinhaltende Funktionalität nutzen. Unter dem Windows-Betriebssystem sind diese auch als "Dynamic Link Libraries", sogenannte DLL-Dateien, bekannt. Da eine solche Datei die Funktionalitäten als kompilierten Maschinencode bereitstellt, sind somit auch performante Berechnungen möglich.

Aus der Analyse der sieben notwendigen Bedingungen der Software-Entwicklung leiten sich folgende Anforderungen ab:

Das Kopplungssystem wird in der objekt-orientierten Programmiersprache C++ entwickelt. Die Schnittstellen des Codes sind so ausgelegt, dass die Nuklidkonzentrationen in den FT71-Dateien als Basis für die Übergabe der Simulationsdaten dienen. Der Funktionsumfang des C++-Interpreter CINT von ROOT wird durch eine neue "Shared Library" erweitert, welche alle Funktionalitäten des Kopplungssystems bereitstellt.

Die Benutzer der Software greifen später nur auf die definierten Klassen und Funktionalitäten zurück, um neue Auswertungsroutinen, angepasst an ihre Anforderungen, zu entwickeln. Durch die Wahl von ROOT als Softwarearchitektur können die bereits existierenden Funktionalitäten, wie graphische Darstellungen, Histogramme oder Kurvenanpassungen direkt auf die Ergebnisse aus den FT71-Dateien angewendet werden.

Die nächsten Abschnitte beschreiben die unterschiedlichen Hauptkomponenten der Kopplungssoftware und zeigen anhand von vereinfachten Beispielen die Handhabung der Software.

Entsprechend dem objekt-orientierten Softwaredesign ist die Architektur der Kopplungssoftware in verschiedene C++-Klassen untergliedert. Die FT71-Dateien sind in eine Kollektion von Binär-Records unterteilt. Jeder dieser Records besteht wiederum aus drei Nuklidvektoren für Actinoide, Spaltprodukte und leichte Elemente. Die leichten Elemente dienen hauptsächlich zur Speicherung der Aktivierungsprodukte. Die Nuklidvektoren besitzen ebenfalls eine logische Unterteilung. Sie entsprechen einer Kollektion von einzelnen Nukliden. Diese vorgegebene Struktur der FT71-Dateien wird mittels C++-Klassen modelliert. Das grundlegende Element des Softwaredesigns ist eine Klasse, welche die Eigenschaften eines Radionuklids beschreibt. Dies ist die kleinste zusammenhängende Dateneinheit, die aus den Binärdateien entstammt. Jedes Nuklid wird eindeutig über einen ZAS-Code identifiziert (Gauld u. a., 2011). Sowohl SCALE als auch MCNP verwenden ein ähnliches Verfahren für die Beschreibung des Identifizierungscodes.

Der ZAS-Code, oder auch ZAID im MCNP-Jargon, entspricht der Kombination aus Kernladungszahl, Massenzahl und dem metastabilen Zustand. Die Vorschrift für die ZAS lautet:

$$ZAS = Z \times 10000 + A \times 10 + M \quad (3.14)$$

Hierbei entspricht  $Z$  der Kernladungszahl,  $A$  der Massenzahl und  $M$  dem metastabilen Zustand des Nuklids. Entsprechend der Konvention bezeichnet  $M = 0$  ein Nuklid im Grundzustand,  $M = 1$  hingegen ein Nuklid in einem angeregten metastabilen Zustand. Nuklide mit mehreren metastabilen Zuständen werden ebenfalls mit  $M = 1$  bezeichnet.

Die entsprechende ZAS für  $^{235}\text{U}$  lautet 922350. Für das metastabile  $^{134m}\text{Cs}$  gilt dementsprechend 551341 für die zugehörige ZAS. Der ZAS-Code eines Nuklids wird als nicht öffentlich zugängliche Variable einer C++-Klasse implementiert. Die Zugriffe auf diese Variable sind nur durch die entsprechenden Zugriffsfunktionen möglich.

Dieses Vorgehen wird im Sprachgebrauch der objekt-orientierten Programmierung als Datenkapselung bezeichnet. Auf die interne Datenstruktur kann nicht direkt zugegriffen werden. Dies verhindert, dass entscheidende interne Zustände eines Objekts in unerwarteter Weise zu verändern sind. Dies erhöht die Datensicherheit und Integrität innerhalb von komplexen Software-Systemen, da die aus den C++-Klassen zur Laufzeit des Programms erzeugten Objekte nur über die vorgesehenen Schnittstellen miteinander kommunizieren



können.

Um alle für das Kopplungsprogramm notwendigen Eigenschaften eines Nuklids vollständig zu beschreiben, wird, wie für die ZAS, zusätzlich auch die Einheit und Mengenangabe des Nuklids gespeichert. Die Einheit kann die in Tabelle 3.1 dargestellten Größen annehmen.

Tabelle 3.1: Mögliche Einheiten der Nuklidklasse

| Größe                                | Einheit        |
|--------------------------------------|----------------|
| Stoffmenge                           | [mol]          |
| Gewicht                              | [g] bzw. [kg]  |
| Aktivität                            | [Bq] bzw. [Ci] |
| Thermische Leistung                  | [W]            |
| Radiotoxizität ICRP-72 (Neugeborene) | [Sv]           |
| Radiotoxizität ICRP-72 (Erwachsene)  | [Sv]           |

Das Kopplungssystem bietet eine Möglichkeit zur Konvertierung zwischen diesen acht Einheiten. Die C++-Isotopenklasse stellt noch weitere Funktionalitäten bereit. So lässt sich aus der ZAS auch der Nuklidbezeichner, bestehend aus Elementsymbol und Massenzahl, bestimmen. Darüber hinaus sind arithmetische Berechnungen mit Nukliden möglich. Durch die Überladung der "-", "+", "×", "/"-Operatoren können Berechnungen, wie Differenzen, Summen oder Gewichtung mit Faktoren direkt mit den Nukliden implementiert werden.

Die nächsthöhere Ebene in der Modellierung bezieht sich auf einen Nuklidvektor. Ein Nuklidvektor ist eine Zusammenstellung von Nukliden. In der Programmiersprache C++ bieten sich die aus der "Standard Template Library" (STL) entstammenden Container `std::vector<T>` an. Diese können eine Kollektion von gleichartigen Objekten enthalten. Zudem ist es möglich, auf beliebige Elemente dieses Containers zuzugreifen.

Die Container müssen nicht in einer festgelegten Reihenfolge durchgegangen werden, um auf ein bestimmtes Element zuzugreifen. Somit sind auch effiziente Suchen und Auswahlverfahren möglich.

Die Modellierung eines Nuklidvektors geschieht über `vector<cisotope>`. Dieser Codeabschnitt besagt, dass ein Container vom Typ `cisotope` definiert wird. `cisotope` umfasst die gesamte Funktionalität für eine Verarbeitung eines Nuklids. Der C++-Vektor aus `cisotope` Objekten bildet einen Nuklidvektor in die Objektstruktur von C++ ab. Die Eigenschaften eines Nuklids bleiben weiterhin in dem Objekt von `cisotope` gekapselt.

Die Modellierungsebene überhalb des Nuklidvektors ist ein Binär-Record der FT71-Datei. Dieser umfasst neben den drei Nuklidvektoren für Actinoide, Spaltprodukte und leichte Elemente weitere Zusatzinformationen, die für die Auswertung der Abbrandrechnungen notwendig sind. Der Aufbau der FT71-Dateien wurde anhand der im SCALE-Handbuch abgedruckten FORTRAN Schreibsequenz im Anhang F7.A (ORIGEN-S) in einer C++-Einlesefunktion implementiert. Damit ist das innere Datenformat des Kopplungsprogramms binärkompatibel zu dem des SCALE-Pakets. Die FT71-Versionen von SCALE 6.0 und 6.1 unterscheiden sich nur durch die Anzahl an Nukliden in den jeweiligen Nuklidvektoren. Die in einem Binärrecord gesicherten Gamma- und Neutronenspektren sind für die Kopplung zwischen SCALE und MCNP von Bedeutung. Diese Spektren werden ausgelesen und in den Kopplungsroutinen automatisiert in eine entsprechende MCNP-Quellendefinition formatiert.

Die oberste Modellierungsebene weist die höchste Komplexität auf, da sich diese auf eine FT71-Datei im Gesamten bezieht und somit aus einer Vielzahl von Records, Nuklidvektoren, Zusatzinformationen und Isotopen besteht. Da jedoch durch den objekt-orientierten Ansatz die Komplexität der FT71-Datei in kleinere Informationseinheiten (Klassen) zerlegt ist, definiert die Klasse *cft71file* die entsprechenden Zugriffsfunktionen für die Dateiein- und ausgabe sowie den Zugriff auf die unterliegende Klassenstruktur.

Der Zusammenhang zwischen der FT71-Datei im Gesamten zu den einzelnen FT71-Binär-Records ist vergleichbar mit der Wechselbeziehung zwischen einem Nuklidvektor und einem Nuklid. Der interne Aufbau der *cft71file* basiert auch auf einem aus der STL entstammenden *vector<cft71record>*. Das Zusammenspiel zwischen *cft71file* und *cft71record* wurde so gewählt, da diese Struktur der Veränderung eines Nuklidvektors im Verlauf des Verarbeitungs- und Konditionierungsprozesses entspricht. Die Wahl des objekt-orientierten Softwaredesigns ermöglicht es, auf die Ergebnisse der SCALE-Abbrandrechnungen auf verschiedenen Ebenen zuzugreifen und die gewünschten Informationen zu extrahieren. Dies ermöglicht den Benutzern ein hohes Maß an logischer Struktur und Flexibilität bei dem Umgang großer Datenmengen und der Analyse von unterschiedlichen FT71-Dateien. Die Abbildung 3.6 zeigt das objekt-orientierte Modell der Klassenhierarchie. Die Modellierung der Klassen und deren Beziehungen untereinander wurde in der Modellierungssprache "Unified Modelling Language" (UML) erstellt. Zur Übersichtlichkeit wird in Abbildung 3.6 auf die Benennung der Funktionsnamen und der internen Variablen verzichtet.

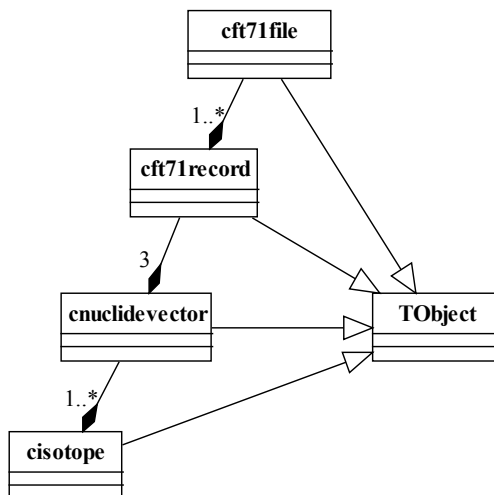


Abbildung 3.6: Darstellung des UML-Diagramms der modellierten Hauptkomponenten des Kopplungsprogramms

Jeder Block des Diagramms bezeichnet eine C++-Klasse. Der Klassenname ist jeweils in der oberen Zeile vermerkt. Die Verbindungen zwischen den Klassen mit ausgefüllten Rauten symbolisieren eine Komposition, welche durch die Anwendung von *vector<T>* modelliert sind. Die Zahlenwerte neben den Rauten geben Aufschluss über die Häufigkeit, die die Komposition annehmen kann. Der Fall 1..\* deutet an, dass mindestens ein Element vorliegen muss, jedoch die obere Maximalanzahl nicht spezifiziert ist. Die Häufigkeit der Komposition zwischen einem FT71-Record und den Nuklidvektoren ist drei, da für jeden Record jeweils ein Nuklidvektor für Actinoide, Spaltprodukte und leichte Elemente hinterlegt ist.

Die *TObject*-Klasse ist eine grundlegende Basisklasse für die in ROOT existierenden Klassen. Die Eigenschaften dieser Klasse werden an die vier Hauptklassen vererbt. Dies ermöglicht eine Integration der neu entworfenen Klassen in die bestehende Klassenhierarchie von ROOT.

Der Software-Entwurf sieht neben diesen vier Hauptklassen drei Nebenklassen vor. Diese Klassen dienen der Flexibilität und Benutzerfreundlichkeit der Klassensammlung.

Die Funktionalitäten der Klassen sind in drei Bereiche unterteilt. Der statistischen Auswertung von Informationen, die Konvertierung von Einheiten und die Schnittstellendefinition

zu ORIGIN-S.

Die *corigendecay*-Klasse befasst sich mit den Schnittstellendefinitionen für die Zerfallsrechnung mit ORIGIN-S, (siehe Abschnitt 3.2).

Innerhalb der Kopplungsprogramme wird davon ausgegangen, dass die Materialien aus dem Reaktorkern bereits entladen sind und somit Rohabfälle für die Wiederaufarbeitung oder direkte Endlagerung darstellen. Somit reduziert sich die Anwendung von ORIGIN-S auf die zeitliche Änderung des Nuklidinventars in Abhängigkeit der Kühlzeit, die Eigenschaften wie Abbrand, initiale Anreicherung und der Effekt der unterschiedlichen Reaktorparameter sind in den Nuklidkonzentrationen der FT71-Dateien enthalten.

ORIGIN-S ist für die automatisierte Berechnung innerhalb des SCALE-Pakets gedacht. Daher ist die Definition der Eingabeparameter in dieses Programm eher für die effiziente Übergabe durch eine Kontrollroutine und nicht für die Bearbeitung durch einen Benutzer optimiert. Aus ORIGIN-S wurde das Softwareprodukt "Modular ORIGIN-S" abgeleitet. Dieses Programm bietet denselben Funktionsumfang wie ORIGIN-S aus dem SCALE-Paket. Jedoch wurden die Schnittstellen nun mit C++ implementiert, um die Kopplung des Codes an andere Simulationsprodukte zu erleichtern (Yesilyurt u. a., 2011).

Dieses Programm wurde in die ursprüngliche Planung nicht einbezogen, da die Veröffentlichung zu einem Zeitpunkt erfolgte, der bereits in der Implementierungsphase der Software lag. Daher wurde eine eigene vereinfachte Kopplung zu ORIGIN-S implementiert.

Ziel der Entwicklung ist es, für die Benutzer eine einfache Schnittstelle zwischen den geladenen FT71-Dateien und ORIGIN-S zu erzeugen. Die Eingabedateien von ORIGIN-S werden durch die Klasse *corigendecay* automatisiert erzeugt. Als Eingabeparameter sind der entsprechende FT71-Record sowie die Zerfallsdauer an den Konstruktor der Klasse zu übergeben. Nach Beendigung der Berechnung legt SCALE eine neue FT71-Datei an, die mit den vorliegenden Klassen eingelesen wird. Damit ist auf eine sehr einfache Weise das Zeitverhalten einer Abfallzusammensetzung zu modellieren.

Für das Design der Statistik- und Konversionsklassen kommt das wohl bekannteste objekt-orientierte Designmuster zur Anwendung. Das sogenannte "Singleton-Pattern" bewirkt, dass zur Laufzeit eines Programms nur ein Objekt einer Klasse existieren kann.

Während der Designphase der entwickelten Software wurde dieses Design ausgewählt, um sicherzustellen, dass nur bei der ersten Instanziierung des Objekts die Konversionsfaktoren aus der Datenbank geladen werden. Zur Laufzeit des Programms kann an unterschiedlichen Stellen auf das Objekt zugegriffen werden. Wäre die Konversionsroutine keine

Singleton-Klasse, müsste jede Instanziierung unter deutlichem Performanceverlust die kompletten Konversionsfaktoren laden und verarbeiten. Die angewandten Konversionsfaktoren für thermische Leistung und Halbwertszeit entstammen aus der Datenbank des WASTE-Programms, welches am Institut für Nuklearen Brennstoffkreislauf (INBK) in Aachen entwickelt wurde (Biß, 2014). Die Datenbank selbst ist abgeleitet aus der ENDF-B/VII.0 Bibliothek und umfasst für mehr als 3.700 Radionuklide die Halbwertszeiten und die bekannten Q-Werte für die entsprechenden Zerfallsarten.

Aus diesen Informationen lässt sich die spezifische Aktivität eines Stoffes und die thermische Energiefreisetzung bestimmen. Die für die Radiotoxizität notwendigen Konversionsfaktoren entstammen der ICRP-Richtlinie 72. Die Dosiskonversionsfaktoren beziehen sich auf die schädigende Wirkung von Radionuklide, die durch Inkorporation in den Organismus gelangen. Die Faktoren sind hinterlegt für Neugeborene und auch Erwachsene. Der Aufnahmeweg der Radionuklide erfolgt über die Nahrungskette (Smith, 1997).

Aus diesen Grundparametern lassen sich die Konversionsfaktoren bestimmen, um dynamisch zur Laufzeit die Ergebnisse der Abbrandrechnung oder der deklarierten Schlüsselaktivitäten in die verschiedenen Einheiten zu konvertieren. Tabelle 3.2 zeigt alle angewendeten Konversionsfaktoren.

 Tabelle 3.2: Konversionsmatrix der *cconversion*-Klasse

|       | [Mol]                                      | [g]                         | [kg]                                    | [Bq]                 | [Ci]                               | [W]                              |
|-------|--|-----------------------------|---|----------------------|------------------------------------|----------------------------------|
| [Mol] | 1  | $M$                         | $\frac{M}{1000}$                        | $N_A \times \lambda$ | $\frac{N_A \times \lambda}{ci2bq}$ | $N_A \times \lambda \times heat$ |
| [g]   | $\frac{1}{M}$                              | 1                           | $\frac{1}{1000}$                        | $A_0$                | $\frac{A_0}{ci2bq}$                | $A_0 \times heat$                |
| [kg]  | $\frac{1000}{M}$                           | 1000                        | 1                                       | $1000 \times A_0$    | $\frac{1000 \times A_0}{ci2bq}$    | $1000 \times A_0 \times heat$    |
| [Bq]  | $\frac{1}{N_A \times \lambda}$             | $\frac{1}{A_0}$             | $\frac{1}{1000 \times A_0}$             | 1                    | $\frac{1}{ci2bq}$                  | $heat$                           |
| [Ci]  | $\frac{ci2bq}{N_A \times \lambda}$         | $\frac{ci2bq}{A_0}$         | $\frac{ci2bq}{A_0 \times 1000}$         | $ci2bq$              | 1                                  | $ci2bq \times heat$              |
| [W]   | $\frac{1}{N_A \times \lambda \times heat}$ | $\frac{1}{A_0 \times heat}$ | $\frac{1}{1000 \times A_0 \times heat}$ | $\frac{1}{heat}$     | $\frac{1}{ci2bq \times heat}$      | 1                                |

Die Umwandlung zwischen den unterschiedlichen Einheiten und den Toxizitäten ist äquivalent zu der Berechnung der thermischen Leistung und wird aus Gründen der Übersichtlichkeit ausgelassen.

Die verwendeten Variablen hierbei sind:  $M$  - Molare Masse,  $\lambda$  - Zerfallskonstante,  $ci2bq$  -

$3,7 \times 10^{10}$ ,  $A_0$  - spezifische Aktivität pro Gram und *heat* - die spezifische thermische Leistung pro Becquerel. Die nuklidabhängigen Konversionsfakoren sind in einer Binärdatei gespeichert. Bei der ersten Instanziierung der *cconversion*-Klasse wird die Datei geladen. Die Implementierung dieser Klasse erlaubt, dass die drei Hauptklassen *cisotope*, *cnuclidevector* und *cft71record* von einer beliebigen Einheit in jede andere konvertiert werden können. Dies ist ein sehr flexibles Verfahren, um beispielsweise aus einer berechneten Brennstoffzusammensetzung die Aktivitäten, thermische Leistung und Radiotoxizität zu ermitteln.

Die in diesem Abschnitt besprochenen Eigenschaften und Designentwürfe sind während der Implementierungsphase in die C++-Klassenbibliothek eingeflossen. Das Kopplungssystem stellt für die Benutzer ein sehr flexibles Werkzeug dar, um neue Berechnungsmethoden für die Begutachtung von Abfällen und die Auswertung von Abbrandrechnungen schnell zu implementieren. Das Kopplungssystem ist als Programmbibliothek organisiert, welche von ROOT zur Laufzeit geladen wird. Der Benutzer kann mittels C++-Skripten die Funktionalität des Kopplungssystems steuern.

Die Entwicklung neuer Auswertetechniken kann sowohl interaktiv mit Hilfe des C++-Interpreters CINT als auch durch Implementierung einer Script-Datei erfolgen. Das entwickelte Kopplungssystem lässt sich bereits für die Lösung unterschiedlicher Fragestellungen im Bereich der Produktkontrolle anwenden.

Für die zukünftige Weiterentwicklung der Software sollte man zwei Schwerpunkte ins Auge fassen: zum einen die Kopplung der Simulationsergebnisse der Abbrandrechnungen mit dem ORIGIN-S Code. ORIGIN-S besitzt, bedingt durch den Einsatz innerhalb des SCALE-Pakets, eine auf diese Anwendung festgelegte Schnittstelle. Eine Erweiterungsmöglichkeit wäre der Einsatz des "Modular ORIGIN-S", welches sich durch seine auf C++ basierende Schnittstellenstruktur besser in das Softwaredesign der Kopplungssoftware einfügen würde. Zudem ließe sich das am IEK-6 entwickelte Programm TNT (Topological Nuclide Transmutation) als Ersatz von ORIGIN in das Kopplungsprogramm integrieren (Kasselman u. a., 2014).

Der zweite Punkt ist die Parallelisierung einzelner Codebereiche. So kann beispielsweise das Einlesen der FT71-Dateien parallelisiert werden, da die eingelesenen Objekte voneinander unabhängig im Speicher vorliegen.

Ziel der bisherigen Arbeiten war die Entwicklung einer Software, auf deren Basis die Eigenschaften von radioaktiven Abfällen untersucht werden können. Durch die konsequente Nutzung des objekt-orientierten Designs ist die Software für die zukünftige Wartung und Erweiterungsfähigkeit sehr gut aufgestellt. Die Deklarationen der entwickelten C++-Klassen sind im Anhang dargestellt.

### 3.4 Funktionalität des Kopplungsprogramms

In diesem Abschnitt soll anhand mehrerer Beispiele die grundlegende Funktionsweise des Kopplungssystems aufgezeigt werden. Die Beispiele orientieren sich an zwei für die Produktkontrolle relevante Anwendungsfälle. Als drittes komplexeres Beispiel wird die Radiotoxizität eines Abfallstroms unter Variation der "Partitioning und Transmutations"-Szenarien berechnet. Darüber hinaus wird eine hypothetische Wiederaufarbeitungsanlage modelliert um Effekte der Abbrandbestimmung auf das Nuklidinventar von  $^{79}\text{Se}$  zu untersuchen.

#### 3.4.1 Berechnung der thermischen Leistung

Ziel der Produktkontrolle von radioaktivem Abfällen ist sicherzustellen, dass die begutachteten Abfallgebinde entsprechend den festgelegten Prozessparameters hergestellt sind und die daraus resultierenden Produkteigenschaften die geforderten Bedingungen für die Einbringung in ein Endlager einhalten. Im ersten Beispiel wird die thermische Leistung einer Glaskokille aus der Wiederaufarbeitungsanlage in Karlsruhe mit dem zulässigen Grenzwert verglichen. Das entwickelte Kopplungssystem gibt den funktionellen Rahmen vor, den ein Gutachter nutzen kann, um neue Auswertungen und Analysemethoden zu implementieren. Aus der elektronischen Kopie der Gebindebegleitdokumentationen der VEK-Glaskokillen wurden die deklarierten radiologischen Gebindeeigenschaften in FT71-Dateien gespeichert. Diese Dateien werden für die Analyse durch das Kopplungssystem geladen. Die hierfür geschriebene Testfunktion übernimmt den Namen der zu analysierenden FT71-Datei und den Grenzwert für diesen Abfallstrom. Die Funktionalität ist in vier Schritte untergliedert. Aus der geladenen FT71-Datei wird der erste Record geladen. Dieser Record umfasst das gesamte deklarierte Nuklidspektrum dieser Kokille. Durch die Anwendung von *cconversion* lässt sich dieses Spektrum in eine thermische Leistung umrechnen. Der abschließende Schritt bestimmt, ob die errechnete thermische Leistung unterhalb des geforderten Grenzwerts ist

```

bool isBelowThermalLimits(const string &fileName, double limit){
    // Einlesevorgang der FT71-Datei
    cft71file dataFile(fileName, true);
4    // Ersten Record laden
    cft71record record = dataFile.GetRecord(0);
    // Record in thermische Leistung konvertieren
    cconversion *conv = cconversion::GetInstance();
    conv->ToWatts(record);
9    // Rückgabewert:
    // true  : Wenn Grenzwert eingehalten
    // false : Wenn Grenzwert überschritten
    return ( record.Sum() < limit ? true : false );
}

```

Abbildung 3.7: Prüfroutine für thermische Leistung

und liefert einen Boole'schen Wert zurück, der beispielsweise für die automatisierte Auswertung vieler Gebindedokumentationen genutzt werden kann. Die in Abbildung 3.7 dargestellte Funktion ist möglichst generisch gehalten, um die Betrachtung von unterschiedlichen Abfallströmen zu ermöglichen. Der Aufruf der Funktion erfolgt im C++-Interpreter CINT des ROOT-Programms. Es werden die zwei benötigten Parameter, Name der Datei und Grenzwert an die Funktion übergeben und der Rückgabewert deutet an, ob der Grenzwert eingehalten wird. `bool value = isBelowThermalLimits("VEK-046.f71", 723.0);`

Im vorliegenden Fall berechnet sich eine thermische Leistung von 570 W, bei einem Grenzwert von 723 W. Somit ist der Rückgabewert *true*, was bedeutet, dass der Grenzwert eingehalten wird. Diese Funktionalität wird im Abschnitt 5.2 genutzt um das Kopplungssystem zu validieren.

### 3.4.2 Ermittlung einer Korrelationsfunktion

Die Aufgabenstellung der Produktkontrolle geht jedoch über die reine Prüfung von Grenzwerten und Gebindeeigenschaften hinaus. So müssen im Laufe der Verfahrensqualifikation für einen neuen Abfallstrom die genutzten Herstellungsverfahren, Messmethoden und Berechnungsverfahren für die Deklaration der erwarteten Gebindeeigenschaften und Inventarangaben geprüft, evaluiert und kritisch hinterfragt werden. Als Beispiel aus der Methodenentwicklung wird die Bestimmung einer Korrelationsfunktion für einen abgebrannten Brennstoff betrachtet. Wie noch vertieft in Abschnitt 6 eingehend beschrieben wird, ist das Verhältnis unterschiedlicher Schlüsselnuklide ein Indiz für den erzielten Abbrand eines



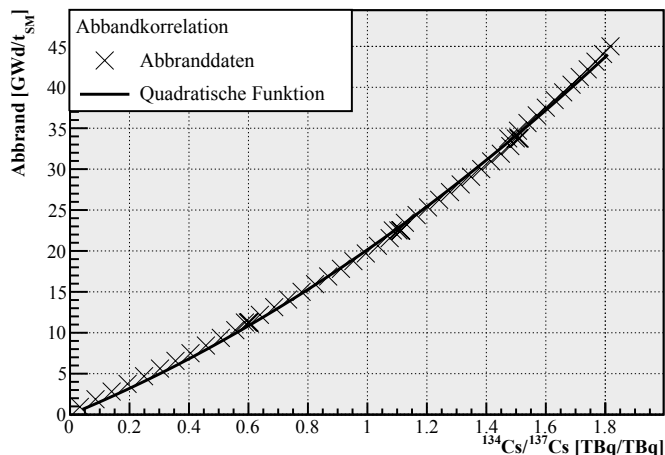


Abbildung 3.8: Zusammenhang zwischen Abbrand und Aktivitätsverhältnis von  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  als Ergebnis der Korrelationsrechnung

Brennstoffs. Im vorliegenden Fall soll aus einer Abbrandrechnung die Korrelationsfunktion zwischen dem Aktivitätsverhältnis  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$  und dem erreichten Zielabbrand ermittelt werden. Die Funktion muss aus der FT71-Datei das Aktivitätsverhältnis sowie den Zielabbrand auslesen, um aus diesen Informationen einen Graphen zu erzeugen. Das Verhältnis zwischen den Caesiumisotopen  $^{134}\text{Cs}$  zu  $^{137}\text{Cs}$  lässt sich mit fortschreitendem Abbrand durch eine quadratische Funktion beschreiben. An diesem Graphen wird eine Kurvenanpassung einer quadratischen Funktion vorgenommen. Hierbei wird an die ermittelten Nuklidkonzentrationen mittels der Methode der kleinsten Fehlerquadrate eine analytische Kurve angepasst. Die ermittelten Parameter werden an den Benutzer übergeben und das Ergebnis graphisch dargestellt. Die Funktion benötigt neben der FT71-Datei auch die Angabe der Records für die die Korrelation bestimmt werden soll. Die Ermittlung von Korrelationsfunktionen ist eine häufige Aufgabe bei der Begutachtung von radioaktiven Abfällen. Daher ist die Berechnung der Aktivitätswerte direkt in die Klasse *cft71file* implementiert. Das Ergebnis dieser Funktion ist in Abbildung 3.8 dargestellt. Diese Arten von Nuklidkorrelationen werden auch dazu genutzt, zwischen dem ermittelten Abbrand, der ermittelten Schlüsselnuklidkonzentration und der geschätzten Kühlzeit auf die Konzentration anderer nicht einfach nachweisbarer Nuklide zu schließen.

### 3.4.3 Berechnung der Radiotoxizität

Diese zwei einfachen Beispiele sind stellvertretend für eine ganze Reihe von Berechnungen und Methoden, die mittels des Kopplungssystems durchgeführt werden können. Die Softwareentwicklung folgt hierbei dem Prinzip, dass die grundlegenden Funktionalitäten durch das Kopplungssystem bereit gestellt werden. Die von den Benutzern erstellten Funktionen greifen auf diese Basisfunktionalitäten zu und verknüpfen diese zu komplexeren Fragestellungen. Dieses Vorgehen ermöglicht eine flexible Erweiterung des Programms und bietet der Produktkontrolle ein sehr mächtiges Prüfprogramm zur Begutachtung von Abfällen und weiterer Methodenentwicklung.

Als weiteres Beispiel für die Verwendung des Kopplungssystems sei die Berechnung der Radiotoxizität von Abfällen aufgezeigt.

Die Radiotoxizität eines Abfallstroms dient als Vergleichswert, um das Verhalten unterschiedlicher Endlagerszenarien zu untersuchen. Die Berechnungsgrundlage der Radiotoxizität lässt sich durch Anwendung des Kopplungssystems und dessen Grundfunktionalität implementieren.

Um die ermittelte Radiotoxizität objektiv bewerten zu können, wird ein Vergleich mit den aus der Literatur vorgeschlagenen Partitioning und Transmutation (P&T)-Szenarien durchgeführt (Magill u. a., 2003).

Die Partitioning-Konzepte zielen darauf ab, durch Extraktions- oder Pyrochemische-Verfahren die langlebigen Actinoide aus dem Abfall abzutrennen. Die Transmutation sieht den Einsatz der abgetrennten Materialien in Brennstoffen für moderne Reaktorkonzepte, wie schnelle Reaktoren oder auf Beschleuniger basierende Konzepte (Stanculescu, 2006), vor. Durch Neutroneneinfang und Spaltprozesse werden die Actinoide in kurzlebigere Elemente überführt. Für die Berechnung der Radiotoxizität des Abfalls werden vier unterschiedliche Szenarien betrachtet, die in Tabelle 3.3 dargestellt sind.

Die Radiotoxizität ermittelt sich aus der Aktivität der unterschiedlichen Nuklide, gewichtet mit dem Dosiskonversionsfaktor für Erwachsene Personen entstammend aus der ICRP-Richtlinie 72:

$$R_i = A_i \times h(g) \quad (3.15)$$

Die Berechnung der Radiotoxizität erfolgt für einen Brennstoff mit einem Zielabbau von

Tabelle 3.3: Vier mögliche P&amp;T-Szenarien, MA steht für Minore Actinoide.

| Szenario | Pu-Abtrennung | MA-Abtrennung | Np-Abtrennung |
|----------|---------------|---------------|---------------|
| I        | 99.5 %        | 99.0 %        | -             |
| II       | 99.5 %        | 95.0 %        | -             |
| III      | 99.5 %        | 90.0 %        | -             |
| IV       | 99.5 %        | 99.0 %        | 99.0 %        |

50 [GWd/ $t_{SM}$ ], welcher mittels TRITON berechnet wurde, vgl. Abschnitt 3.2.1.

Die erzeugte FT71-Datei wird durch das Kopplungssystem eingelesen und weiterverarbeitet. Im ersten Schritt wird der *cft71record*, welcher die Nuklidzusammensetzung des abgebrannten Brennstoffs beinhaltet, entsprechend den vier Szenarien aus Tabelle 3.3 modifiziert. Der modifizierte Record wird an ein Objekt der Klasse *corrigendecay* übergeben, um den Zerfall bis  $1 \times 10^6$  Jahren zu bestimmen. Die neu erzeugten FT71-Dateien werden wiederum eingelesen und deren Werte in die Radiotoxizität konvertiert. Das Ergebnis der Simulationsreihe ist in Abbildung 3.9 dargestellt. Durch Abtrennung der Minoren Actinoide, Neptunium und Plutonium lässt sich die Radiotoxizität eines Abfallstroms maßgeblich reduzieren. Nach etwa 130.000 Jahren liegt die Radiotoxizität des unbehandelten Abfalls wieder auf dem Niveau eines frischen Urandioxid-Brennstoffs mit 4,2 [Gew.-%] Anreicherung. Die Kontrolllinie entspricht diesem Brennstoff im Gleichgewicht mit seinen Zerfallsprodukten. Durch die Abtrennung von Plutonium und der Minoren Actinoiden ist dieser Zustand bereits zwischen 600 und 1.800 Jahren erreicht, in Abhängigkeit der Effizienz der P&T-Szenarien. Würde nun zusätzlich Neptunium selektiv aus dem Abfallstrom abgetrennt, reduziert sich die Zeit, um auf das Referenzniveau abzusinken, auf 400 Jahre. Insgesamt konnten die Zeiten aus der Literatur in der Berechnung der Radiotoxizität sowohl im zeitlichen Verlauf, als auch in der Höher der Radiotoxizität reproduziert werden (Magill u. a., 2003). Jedoch sind Effekte, hervorgerufen durch unterschiedliche Zerfallsbibliotheken und Unsicherheiten der verschiedenen Abbrandcodes, nicht berücksichtigt.

### 3.4.4 Modellierung einer hypothetischen Wiederaufarbeitungsanlage

Die Funktionalität des Kopplungssystems ist nicht auf die gezeigten einfachen Fälle beschränkt. Für die Produktkontrolle ist es notwendig, durch Szenarioanalysen auch die Begutachtung von Herstellungsprozessen zu verifizieren. Es ist durch das Kopplungsprogramm

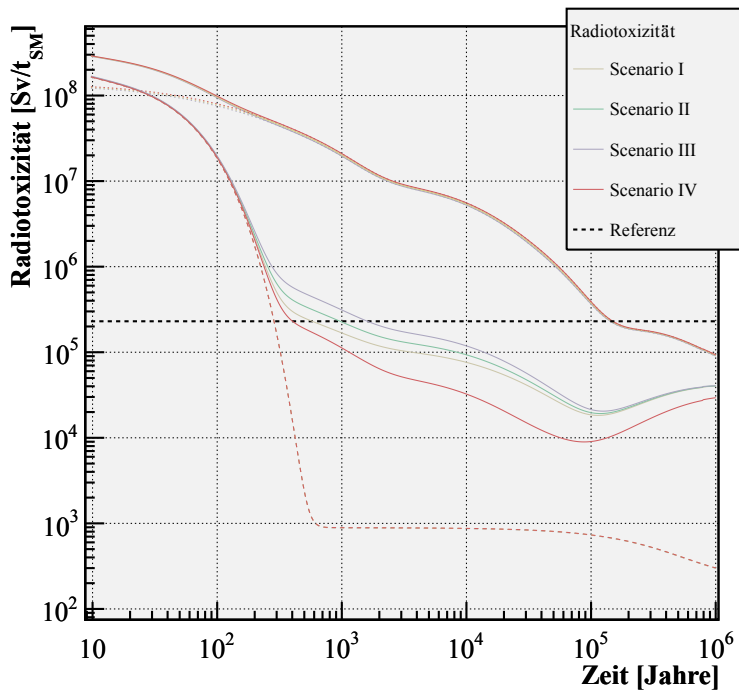


Abbildung 3.9: Ergebnis der Radiotoxizitätsberechnung der vier Szenarien, Referenzlinie entspricht frischem Urandioxidbrennstoff

möglich, komplizierte Szenarien zu variieren, indem die bereits implementierten Methoden zu neuen Analysen zusammengesetzt werden. Als abschließendes Beispiel für die Funktionalität des Kopplungssystems wird eine hypothetische Wiederaufarbeitungsanlage modelliert. Wie bereits in Abschnitt 1.2.1 angesprochen wurde, werden Nuklide, die schwer oder kaum nachweisbar sind, meist ohne aufwendige Analytik oder physikalische Messungen charakterisiert, sondern alleinig durch Korrelationsmethoden deklariert. Die RSK-Stellungnahme für die kompaktierten metallischen Abfälle zeigt, dass das langlebige Spaltprodukt  $^{79}\text{Se}$  in einem bestimmten Verhältnis mit dem direkten Spaltprodukt  $^{125}\text{Sb}$  steht (Rea, 2005).  $^{125}\text{Sb}$  wird hierbei als Schlüssel- oder Leitnuklid bezeichnet. Dies führt zu einer Unsicherheit, wenn die Kühlzeit nicht exakt zu bestimmen ist. Das Schlüsselnuklid  $^{125}\text{Sb}$  ist mit einer Halbwertszeit von 2,77 Jahren ein kurzlebiges Spaltprodukt. Die Halbwertszeit von  $^{79}\text{Se}$  liegt hingegen bei  $4,8 \times 10^5$  Jahren. Diese Simulationsreihe soll das Verhalten der Korrelationsrechnung bewerten.

Als Grundlage für die Berechnungen wird hierfür eine hypothetische Wiederaufarbeitungsanlage modelliert. Es wird davon ausgegangen, dass die Anlage insgesamt 38 Jahre im Betrieb war. Zehn Jahre nach Beendigung des aktiven Betriebs sollen die in Tanks verbleibenden Spülflüssigkeiten konditioniert werden. Der jährliche Durchsatz an Schwermetall sei 400 Tonnen für diese Anlage. Somit werden über den gesamten Betriebszeitraum 15.600 Tonnen an Schwermetall verarbeitet. Die Anlage arbeitet nach dem PUREX-Verfahren mit einer Abtrenneffizienz von 99,9 % für Uran und Plutonium. Für die Berechnung des Inventars wird davon ausgegangen, dass 0,01 % der ursprünglichen Aktivität in der Spüllösung verbleibt.

Diese Randbedingungen werden durch die C++-Klassen des Kopplungssystems implementiert. Der Betrieb der Anlage wird in kleinere Zeitschritte unterteilt. Für die Berechnung der Gesamtmenge an verarbeitetem Schwermetall wird davon ausgegangen, dass die Anlage in jedem Betriebsjahr die volle Kapazität von 400 Tonnen erreicht. Für jeden Zeitabschnitt wird der entsprechende Anteil an Schwermetall an das System kontinuierlich übergeben.

Die Abbildung 3.10 zeigt schematisch den Aufbau der Simulation. Für eine Diskretisierung des Betriebszeitraums und der anschließenden Zwischenlagerung, in  $N$  durch den Benutzer festgelegte Zeitschritte, sind  $2N + 1$  Zerfallsrechnungen notwendig. Zu jedem Zeitschritt wird ein Abbranddatensatz eingelesen. Dieser ist bezogen auf den Zeitpunkt der Reaktorsabschaltung und muss somit für die Wiedergabe der korrekten Aktivitätsverhältnisse zum

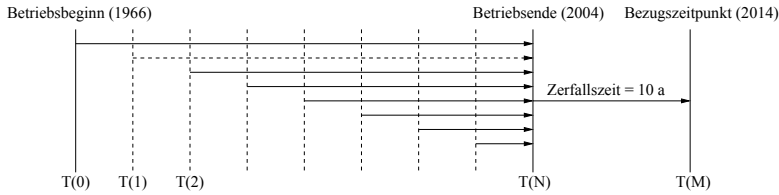


Abbildung 3.10: Simulationskonzept einer hypothetischen Wiederaufarbeitungsanlage

Zeitpunkt der Wiederaufarbeitung mit einer Zerfallszeit zwischen sechs und acht Jahren Kühlzeit beaufschlagt werden. Für die Verarbeitung der Kernbrennstoffe sind drei unterschiedliche Modelle möglich:

1. Konstanter Abbrand mit  $[\text{GWd}/t_{SM}]$
2. Linear ansteigender Abbrand zwischen 20 bis 40  $[\text{GWd}/t_{SM}]$
3. Zufällig verarbeiteter Abbrand zwischen 20 bis 40  $[\text{GWd}/t_{SM}]$

Im dritten Fall wird der Abbrand durch die Anwendung von gleich-verteilten Zufallszahlen ausgewählt. Der Zielabbrand wird einer Zufallszahl zugeordnet, welche für jeden Zeitabschnitt neu bestimmt wird. Die Auswahl der zu verarbeitenden Kernbrennstoffe wurde in das Modell implementiert und ermöglicht somit einen Vergleich dieser drei Annahmen. Für jeden Zeitschritt im Betrachtungszeitraum sind die folgenden Arbeitsschritte notwendig:

1. Einlesen des abgebrannten Brennstoffs
2. Normierung auf die zu verarbeitende Menge an Schwermetall
3. Zerfallsrechnung zwischen Reaktorabschaltung und Wiederaufarbeitung
4. Extraktion von Uran und Plutonium
5. Zerfallsrechnung bis zum Ende der Betriebszeit
6. Transfer der ermittelten Nuklide in den Summenvektor

Nach Ablauf des Betriebszeitraums wird für den ermittelten Summenvektor, welcher das Inventar der Spülflüssigkeit darstellt, eine weitere Zerfallsrechnung durchgeführt, um die Änderung des Inventars im Nachbetriebszeitraum von 10 Jahren zu berechnen.

Vor der Konditionierung des Abfallprodukts soll mittels Korrelationsfunktionen die Konzentration von  $^{79}\text{Se}$  in der Spüllüssigkeit untersucht werden. Hierzu werden die in Kapitel 6 vorgestellten Korrelationsfunktionen genutzt, um aus den gegebenen Aktivitätsverhältnissen den Wert für  $^{79}\text{Se}$  zu berechnen.

Der Betriebszeitraum der Anlage wird in eine Anzahl von Verarbeitungsschritten unterteilt. Die Diskretisierung der Zeitabschnitte lag zwischen einer und 1000 Stützstellen. Für die Berechnung der Abklingzeit vor der Wiederaufarbeitung sei an dieser Stelle ein konstanter Wert von sechs Jahren vorgegeben. Insgesamt errechnet sich somit eine Kühlzeit von Beginn des Betriebs von 55 Jahren. Im ersten Schritt wird aus dem ermittelten Inventar der Spüllösung die mittlere Kühlzeit abgeleitet. Tabelle 3.4 zeigt die errechnete Kühlzeit in Abhängigkeit der Zeitschritte.

Tabelle 3.4: Ermittelte Kühlzeit der Spüllösung

| Geschätzte Kühlzeit [a] |                    |                      |                    |
|-------------------------|--------------------|----------------------|--------------------|
| Zeitschritte            | Konstanter Abbrand | Ansteigender Abbrand | Zufälliger Abbrand |
| 1                       | 54,97              | 55,37                | 54,93              |
| 2                       | 36,37              | 36,68                | 36,30              |
| 4                       | 28,02              | 28,15                | 28,35              |
| 10                      | 23,87              | 23,94                | 24,27              |
| 100                     | 21,88              | 21,97                | 21,86              |
| 1000                    | 21,70              | 21,75                | 21,71              |

Die in Tabelle 3.4 wiedergegebenen Werte sind die Mittelwerte der betrachteten Korrelation, die systematischen Fehler der Kühlzeitkorrelation werden eingehend im Kapitel 6 behandelt. Für die Simulation mit nur einem Zeitschritt wird angenommen, dass das gesamte Produktionsvolumen in einem Schritt verarbeitet wurde. Dieser Fall ist nicht realistisch und dient ausschließlich zur Stabilitätskontrolle. In diesem Fall liefert die Korrelationsfunktion zur Bestimmung der Kühlzeit eine gute Schätzung der Gesamtkühlzeit, da es einen genau definierten Zeitpunkt für die Verarbeitung der Materialien existiert. Werden nun über den Betriebszeitraum mehrere Stützstellen genutzt, verteilen sich die Zerfallszeiten auf unterschiedliche Zeiträume.

Werden nun sukzessive mehr Zeitschritte in die Rechnung einbezogen, ändert sich der Schwerpunkt der Kühlzeit. Für alle drei Modelle ist ein vergleichbares Verhalten erkennbar. Die Kühlzeitberechnung ist sensitiv auf die Materialien, die zum Ende der Betriebszeit hin

Tabelle 3.5: Ermittelter Zielabbrand der Spüllösung

| <b>Geschätzter Zielabbrand</b> [GWd/ $t_{SM}$ ] |                    |                      |                    |
|---|--------------------|----------------------|--------------------|
| Zeitschritte                                    | Konstanter Abbrand | Ansteigender Abbrand | Zufälliger Abbrand |
| 1   | 28,20              | 17,88                | 24,23              |
| 2   | 20,87              | 21,28                | 21,55              |
| 4   | 17,92              | 20,83                | 20,15              |
| 10  | 16,91              | 20,55                | 16,22              |
| 100   | 16,72              | 20,70                | 17,80              |
| 1000  | 16,72              | 20,75                | 17,27              |

verarbeitet wurden. Die ermittelte Kühlzeit tendiert zu einem Grenzwert von 21,7 Jahren.

Die Änderung der Kühlzeit wirkt sich auch auf die Bestimmung des Abbrands aus. Die Schlüsselnuklide für den Abbrand sind  $^{154}\text{Eu}$  sowie  $^{137}\text{Cs}$ . Eine ungenaue Einschätzung der Kühlzeit führt zu einer fehlerhaften Korrektur der Kühlzeit und somit zu einer Abweichung des ermittelten Abbrands. Tabelle 3.5 fasst die ermittelten Abbrände des Summenvektors zusammen.

Aufgrund der fehlerhaften Kühlzeitkorrektur kommt es zu einer Verschiebung des ermittelten Zielabbrands. Für alle drei Abbrandmodelle wird der mittlere Zielabbrand deutlich unterschätzt. Bei der Modellierung mit einem einzigen Zeitschritt liegt die Unterschätzung bei 6 %. Diese nimmt jedoch mit zunehmender Anzahl an Zeitschritten zu. Für das konstante Modell liegt die Unterschätzung bei eingestellten 1000 Zeitschritten bei -44,3 % beim Vergleich zwischen korreliertem und erwarteten Wert. Dies liegt an der Variation der Kühlzeit. Auch wenn im Falle des konstanten Abbrands immer das gleiche Nuklidinventar verarbeitet wird, kommt es durch die unterschiedlichen Zerfallszeiträume zu diesem Effekt.

Sowohl die ermittelte Kühlzeit als auch der mittlere Abbrand können im letzten Schritt der Untersuchung dazu verwendet werden, den Anteil an  $^{79}\text{Se}$  aus der Aktivität des  $^{125}\text{Sb}$  abzuleiten. Die Koeffizienten dieser Korrelationsrechnung sind in Abschnitt 6.4 hergeleitet. Aus den drei ermittelten Parametern lässt sich das  $^{79}\text{Se}$ -Inventar schätzen. Tabelle 3.6 zeigt die relative Abweichung zwischen der Schätzung und dem Inventar abgeleitet aus dem Summenvektor.

Die Unterschätzung des Abbrands wirkt sich direkt proportional auf die Bestimmung des  $^{79}\text{Se}$ -Inventars aus. Für die Simulationsreihe mit nur einem Zeitschritt liegt die Abweichung



Tabelle 3.6: Abweichung zwischen erwarteter und errechneter  $^{79}\text{Se}$ -Aktivität

| <b>Vergleich geschätztes zu erwartetes Aktivitätsinventar. [%]</b> |                    |                      |                    |
|--|--------------------|----------------------|--------------------|
| Zeitschritte   | Konstanter Abbrand | Ansteigender Abbrand | Zufälliger Abbrand |
| 1  | 11,2               | 8,2                  | 10,7               |
| 2  | -30,6              | -11,7                | -22,7              |
| 4  | -38,2              | -33,9                | -34,6              |
| 10   | -43,4              | -40,8                | -43,7              |
| 100  | -44,2              | -42,1                | -43,7              |
| 1000   | -44,1              | -42,0                | -44,6              |

zwischen dem Erwartungswert und der ermittelten Konzentration zwischen 8,2 und 11,2 %, diese Diskrepanz ist darauf zurückzuführen, dass für die Korrelationsrechnungen nicht der selbe Brennstoff wie für die Bestimmung der Koeffizienten genutzt wurde. Es wurde zwar der selbe Reaktortyp, jedoch mit unterschiedlichen Reaktorparametern für die Bestimmung der Korrelationsfunktionen, genutzt. Wie auch bei dem Abbrand führt die Betrachtung mehrerer Zeitschritte zu einer weiteren Unterschätzung des Inventars.

Diese Simulationsreihe macht deutlich, dass die Nuklidkorrelationsrechnungen nur in einem begrenzten Maß Gültigkeit besitzen. In Situationen, in denen gemischte Stoffströme begutachtet werden sollen, kommt es durch die unterschiedlichen Abbrandbedingungen zu Abweichungen bei der Bestimmung der Korrelationen, was sich in einer größeren Unsicherheit widerspiegelt. Im Fall der hier betrachteten  $^{79}\text{Se}$ -Korrelation wurden Abweichungen von Faktor 2 ermittelt. Diese Problematik wird im Kapitel 7.2 im Bezug auf die metallischen Abfallgebinde vertieft besprochen.

### 3.5 Begleitende Software-Entwicklung

Um die volle Funktionalität des Kopplungssystems auszunutzen, wurde zusätzliche Software entwickelt, die den Benutzer unterstützen soll. Hauptsächlich dient die Software dem Zugriff auf die Ressourcen des Clusters. Ein wichtiges Programm ist der SCALECreator. Üblicherweise wird ein SCALE-Modell entweder manuell, oder durch die Anwendung des graphischen Eingabeprogramms GeeWiz, vgl. (Bowman, 2011), erzeugt. Die Inputdateien der SCALE-Abbrandrechnungen sind nach einem festgelegten Muster aufgebaut. Um eine

Variationsrechnung für einen oder mehrere Parameter durchzuführen, müssen an verschiedenen Stellen der Datei konsistente Änderungen vorgenommen werden. Dieses Vorgehen ist nicht nur zeitaufwändig, sondern auch fehleranfällig, da der Nutzer selbst die Änderungen vornehmen muss. Um die Effekte durch Parametrierungsfehler zu minimieren, wurde SCALECreator entwickelt. Dieses Programm dient der automatischen Generierung der Inputdateien für die Abbrandrechnung. In einer Steuerdatei sind alle relevanten Informationen zusammengefasst. Aus diesen Angaben wird im Verlauf des Programms die Eingabe für SCALE erzeugt. Im ersten Schritt durchläuft das Programm eine Konsistenzprüfung, ob die eingegebenen Daten der Steuerdatei valide sind. Im zweiten Schritt werden, je nach Wahl der Parameter, die durch SCALECreator unterschiedliche Dateien erzeugt. Die Geometrie der Brennelemente ist mit Hinblick auf den Einsatzbereich des Kopplungssystems auf rechtwinklige Gitter limitiert. Die Modelle der Parametervariation aus Abschnitt 6.2 wurden mittels des SCALECreators erzeugt.

### 3.6 Generische Modellierung von Abfallströmen

Die Funktionalität des Kopplungssystems stellt die Basis für die Entwicklung weiterer Analysemethoden dar. Hierbei werden die vorgegebenen C++-Klassen miteinander verknüpft, um neue Berechnungsmethoden zu implementieren. Für die weitergehende Analyse wird auf Basis der bisherigen Softwareentwicklung ein System zur generischen Modellierung von Abfallströmen aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen und die Begutachtung ihrer allgemeinen Eigenschaften entwickelt. Die Software ist die Grundlage für die Untersuchung der mittelaktiven, metallischen Abfälle, vgl. Kapitel 7. Die Software ist jedoch so ausgelegt, dass sie zukünftig, wenn nötig, auf neue Abfallströme erweitert werden kann.

Um den Gutachtern der Produktkontrollstelle eine Einschätzung von unterschiedlichen Szenarien der Abfallbehandlung zu ermöglichen, werden die unterschiedlichen Arbeitsschritte einer Wiederaufarbeitungsanlage modelliert. Der Prozessablauf einer Wiederaufarbeitungsanlage ist in Abschnitt 1.2.1 dargestellt.

Der gesamte Prozess lässt sich in mehrere Teilprozesse mit definierten Ein- und Ausgabeprodukten unterteilen. Die ermittelten Zwischenprodukte eines Teilprozesses werden im nächsten Prozessschritt aufgegriffen und weiterverarbeitet. Aus der Sicht der Softwareentwicklung kann dieses Verhalten durch das Softwareprinzip "Pipeline-Pattern" umgesetzt

werden. Die einzelnen Teilprozesse der Wiederaufarbeitung werden als entsprechende C++-Klassen implementiert. Die Definition der Schnittstellen der einzelnen Klassen basieren auf der Übergabe von *cft71record*-Objekten, welche das gesamte Radionuklidinventar beinhalten. Die für die Abfallströme charakteristischen Prozessparameter werden im Abschnitt 7 hergeleitet. Von der Programmlogik sind drei Bereiche vorgesehen:

- Verwaltung der Datensätze und Prozessparameter
- Beschreibung des Prozesses
- Bestimmung der Abfallcharakteristika

Der Prozess der Wiederaufarbeitung ist in fünf C++-Klassen unterteilt, welche in den folgenden Abschnitten näher beschrieben werden. Abbildung 3.11 zeigt schematisch die fünf Teilprozesse.

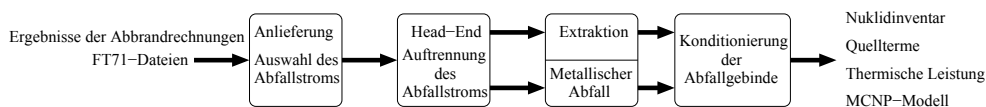


Abbildung 3.11: Konzept der Modellierung

Basis für die Berechnungen des Programms sind die aus den Abbrandrechnungen ermittelten Nuklidvektoren, welche in Abhängigkeit von den reaktorphysikalischen Parametern und des Zielabbrands ermittelt werden. Das Einlesen und Verarbeiten der Nuklidvektoren erfolgt mittels der in Abschnitt 3.3 vorgestellten C++-Klassen. Die Prozesskette startet mit dem Anlieferungsmodul. Hierbei übergibt der Benutzer eine vorgegebene Liste von Simulationsdateien an das Modul. Die Simulationsdateien werden ausgewertet und die ermittelten Kenndaten der übergebenen Nuklidvektoren ermittelt. Die Kennzahl des Abbrands gibt das Modul an den Benutzer zurück. Um auch das Verhalten der Wiederaufarbeitung im Bezug auf die Mischung aus unterschiedlichen Reaktoren und Abbrandzustände zu untersuchen, kann der Nutzer mehrere Abfallströme mit einer entsprechenden Gewichtung der Mengen, bezogen auf die Gesamtmasse der zu verarbeitenden Abfälle, an das Anlieferungsmodul übergeben. Die Gesamtmasse an Abfällen kann ebenfalls durch den Benutzer geändert werden, wobei eine Normierung auf die entsprechenden Mengen vorgenommen wird. Die Ergebnisse der Abbrandrechnungen sind bezogen auf den Zeitpunkt der Reaktorsabschaltung. Daher ist ein zusätzlicher Zerfallsschritt notwendig. Die Anlieferungsroutine

fragt den Benutzer für jeden übergebenen Abfallstrom nach seiner Kühlzeit vor Beginn der Wiederaufarbeitung und ruft über die *corrigendecay*-Klasse die Zerfallsrechnung auf. Am Ausgang des Anlieferungsmoduls stehen die kühlzeitkorrigierten Nuklidvektoren bereit für die weitere Verarbeitung durch die weiteren Teilprozesse der Wiederaufarbeitung und Konditionierung der Kernbrennstoffe.

Die abgekühlten Brennelemente mit ihren Nuklidvektoren durchlaufen im nächsten Schritt das Head-End-Modul, vgl. Abschnitt 1.2. Durch die Auflösung der Brennstoffmatrix in fast siedender Salpetersäure geht der Hauptteil der Aktivität des Brennstoffs in die Lösung über. Nur ein geringer Anteil bleibt als Anhaftungen an den Brennstoffhülsen zurück. Dieses Verhalten wird durch die gewählten Prozessparameter beeinflusst, wobei die voreingestellten Standardwerte durch den Benutzer abgeändert werden können. Für die unterschiedlichen Komponenten des Abfalls sind die Wahrscheinlichkeiten für den Verbleib in der Brennstofflösung hinterlegt. Abbildung 3.12 zeigt das Prinzip der Verarbeitung. Die

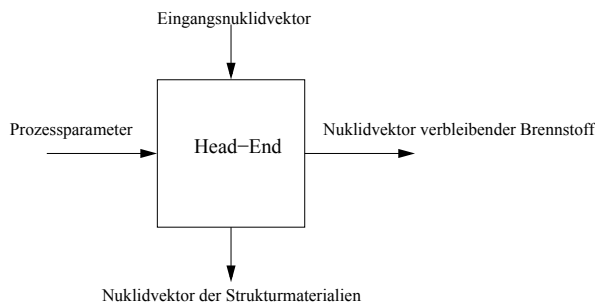


Abbildung 3.12: Konzept der Head-End-Routine

Übergabeparameter sind sowohl die eingestellten Prozessparameter als auch der Nuklidvektor des Eingangstroms. Ausgabe des Moduls sind die Nuklidvektoren der Spaltstofflösung und der Strukturmaterialien.

Nach Auftrennung des ursprünglichen Stoffstroms in zwei Teilströme können diese separat weiterverarbeitet werden. Für die Brennstofflösung ist eine Klasse implementiert, die das Verhalten eines PUREX-Extraktionsprozess nachbildet. Als Prozessparameter sind die Extraktionsfaktoren hinterlegt, mit welcher Abtrennleistung die Wiederaufarbeitungsanlage das Uran bzw. Plutonium abtrennt. In einem weiteren Arbeitsschritt können aus dem erzeugten PUREX-Raffinat die Minoren Actinoide abgetrennt werden. Mit dieser Funktionalität lassen sich die Szenariorechnungen durchführen, die Rückschlüsse auf die Funktio-

nalität und Effizienz von P&T-Konzepten schließen lassen.

Die Massen der unterschiedlichen Strukturmaterialien und Brennstoffanhaftungen sind abhängig vom gewählten Abbrandmodell, sowie den Prozessparametern. Der Anteil an Endstücken kann nicht als konstant für jedes Abfallgebinde angenommen werden. Daher ist ein zusätzlicher Verarbeitungsschritt vorgesehen, der eine Variation der Massen vorsieht. Hierbei kann der Benutzer wählen, welche Masse geändert werden soll. Die Gesamtmasse des Abfalls bleibt dabei konstant, dennoch kann beispielsweise der Einfluss von Endstücken auf die thermische Gesamtleistung oder Dosisleistung untersucht werden.

Für die Zwischenlagerung bis zur Endlagerung lässt sich durch die *corigendecay*-Klasse eine weitere Kühlzeit berücksichtigen. Die Konditionierungsroutine greift zum einen das Nuklidinventar des Abfallstroms und zum anderen ein vordefiniertes MCNP-Modell auf. Das Modell ist lediglich eine Schablone für die Berechnung der Gamma- und Neutronendosisleistung. Dieses Modell legt die grundlegende Geometrie der Berechnung fest. Die abfallspezifischen Eigenschaften des Modells werden aus dem Nuklidinventar abgeleitet. Durch die Massen und Aktivitäten lassen sich die Parameter des konkretisierten Modells ableiten. Hierzu wird vom Benutzer abgefragt, welches Material aus der Abbrandrechnung für die Modellierung der Endstücke vorgesehen ist. Die Dichte der Endstücke wird mit  $7,0 \text{ g/cm}^3$  festgelegt. Die Dichte der Metallmatrix errechnet sich aus dem verbleibenden Volumen und der Masse des restlichen Abfalls. Die Normierung der Aktivitäten ist entsprechend dem Ansatz, welcher in Abschnitt 3.2.3 vorgestellt wurde.

Durch die Kopplung von Abbrandrechnung und Teilchen- und Strahlungstransportsimulationen lassen sich die radiologischen Eigenschaften der Abfallgebinde simulieren. Durch den Strahlungstransport lässt sich die Dosisleistung ableiten, die thermische Leistung und Schlüsselnuklidaktivitäten werden durch das Kopplungssystem bestimmt. Die Auswertung der hochdruckkompaktierten Abfälle wird in Abschnitt 7 beschrieben.

## 4 Cluster-Computing

In diesem Kapitel wird die Entwicklung und Implementierung eines Rechnerclusters besprochen. Die Anwendung von numerischen Simulationen in der Kerntechnik stellen hohe Anforderungen an die zur Verfügung stehenden Rechnerressourcen. Der Cluster stellt eine notwendige Voraussetzung dar, um die geforderte Rechenleistung zu erreichen und somit auch valide Berechnungen in einem begrenzten Zeitraum ausführen zu können. Im Rahmen dieser Arbeit war es daher notwendig ein System aufzubauen, welches auf die Anforderungen der eingesetzten Programme zugeschnitten ist. Die ausführliche Darstellung der Konfiguration und Funktionsweise des Clusters soll die zukünftige Weiterverwendung des Systems sicherstellen.

Einige Simulationen, wie beispielsweise Abbrandrechnungen mittels SCALE, siehe Kapitel 3, sind sehr rechenintensiv, sodass ein effizientes Rechnen auf einem Arbeitsplatzrechner oder einer einzelnen Workstation mit hohem Zeitaufwand verbunden ist. In solchen Fällen ist eine zeitnahe Lösung des Problems, bedingt durch die langen Laufzeiten der Programme, nicht zu erbringen.

Eine mögliche Strategie zur Reduzierung der Rechenzeiten ist die Einschränkung der Problemkomplexität. Damit gehen jedoch stets Verluste in der Genauigkeit der ermittelten Ergebnisse einher. Ein anderer Ansatz liefert der Einsatz von Rechnern mit parallelen Architekturen und funktionalen Strukturen. Bei diesen Systemen werden die Probleme in kleinere Teilaufgaben zerlegt, die im Idealfall unabhängig von einander berechnet werden können. Die Arbeitspakete werden auf verschiedenen Funktionseinheiten des Rechnersystems ausgeführt. Im Falle einer optimalen Skalierbarkeit der Programme ist der Performancegewinn proportional zu der Anzahl an eingesetzten Prozessoren oder Rechnerknoten, jedoch hängt der Skalierungsfaktor zwischen serieller und paralleler Ausführung stark von der Implementierung der Software ab, wie im Verlauf dieses Kapitels noch gezeigt wird.

Der Forschungszentrum Jülich GmbH steht mit JUGENE und JUROPA zwei Massiv-

Parallel-Systeme zur Lösung rechenaufwändiger Probleme zur Verfügung (Attig u. a., 2011). Jedoch gestaltet sich der Einsatz der für diese Arbeit relevanten Softwareprodukte, wie SCALE, auf solchen Hochleistungssystemen als schwierig, da einige dieser Programme von ihrer Softwarearchitektur nicht für den Einsatz auf Massiv-Parallel-Systemen ausgelegt sind. SCALE 6.0 ist beispielsweise rein sequenziell ausgelegt, weshalb eine Alternative für die effiziente Rechnung gefunden werden muss. Der gewählte Lösungsansatz umfasst die Entwicklung und den Aufbau eines Rechnerclusters, welches auf die Architektur der Simulationsprogramme optimiert ist. In den folgenden Abschnitten werden die unterschiedlichen Ebenen des Clustersystems besprochen sowie die Leistungsfähigkeit des Systems anhand von ausgewählten Benchmarks gemessen.

## 4.1 Einführung Cluster-Computing

Im Rahmen eines Forschungsvorhabens der NASA wurde die erste Spezifikation eines "Beowulf-Clusters" 1994 von Thomas Sterling und Donald Becker veröffentlicht. Sie entwickelten am Goddard Space Flight Center der NASA ein Rechensystem, welches ein Netzwerk von Arbeitsplatzrechnern nutzt, um Programme zu parallelisieren (Becker u. a., 1995).

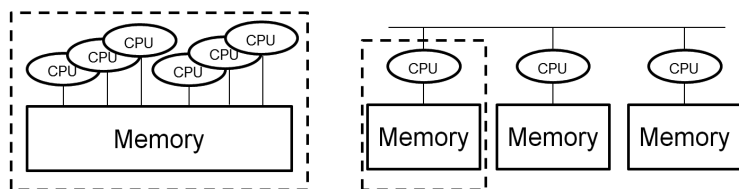


Abbildung 4.1: Vergleich zwischen *shared-memory* (links) und *distributed-memory* (rechts)

Die Idee hinter diesem Rechnerkonzept ist die Aufteilung eines rechenaufwändigen Problems in kleinere Arbeitsschritte, die möglichst gleichmäßig auf die zur Verfügung stehenden Recheneinheiten verteilt werden. Die Bezeichnung, die sich in den letzten Jahren immer mehr durchgesetzt hat, ist Cluster bzw. Cluster-Computing. Während der letzten zwei Dekaden hat der Anteil an Cluster-basierten High-Performance-Rechnersystemen in der TOP-500-Liste vermehrt an Bedeutung gewonnen.

Die bereits erwähnten Systeme JUROPA sowie JUGENE sind ihrerseits ebenfalls Clustersysteme. Für die Simulationstools der Kerntechnik sind Hochleistungsrechner, im Engli-

schen (*high performance computer*, HPC), eine Möglichkeit die Rechenzeit zu minimieren. Dies wird durch die Anwendung hocheffizienter Hardware-Strukturen und Betriebssysteme sowie einer optimierten Systemkonfiguration erreicht. Der hier besprochene Cluster stellt keine Alternative zu den Großrechnern dar, sondern dient als Brücke zwischen den Arbeitsplatzrechnern und den Großrechnern. Die Architektur von Parallelrechnern kann rein konzeptionell in zwei Klassen eingeteilt werden. Bei der *Shared-Memory* Architektur teilen sich mehrere Prozessoren bzw. Prozessorkerne mit einem gemeinsamen Speicherbereich. Somit können verschiedene Prozesse über diesen Speicher kommunizieren, um Daten auszutauschen. Im Gegensatz dazu steht die *Distributed-Memory* Architektur. Hierbei ist jedem Prozessor ein exklusiver Speicher zugeordnet, die Kommunikation zwischen den Prozessen erfolgt über ein Bussystem, beispielsweise Ethernet oder Infiniband. Für beide Architekturen existieren wohlbekannte Ansätze, um die Ausführung der Programme effizient auf die verfügbaren Ressourcen zu parallelisieren. Abbildung 4.1 stellt die zwei Architekturen gegenüber. Ein System mit geteiltem Speicherbereich kann Informationen zwischen den Prozessoren effizient austauschen, jedoch muss hierbei Sorge getragen werden, dass die Informationen zu jeder Zeit eindeutig einem Prozess oder Thread zugeordnet sind. Daher ist in der Programmierung von “shared-memory” Anwendungen die Synchronisation und Absicherung der Daten ein wichtiges Thema. Die Systeme mit verteiltem Speicher können nur über Nachrichten miteinander kommunizieren. Dies bewirkt eine höhere Latenz bei einem Nachrichtenaustausch als bei Systemen mit geteilten Speichern.

## 4.2 Logische Ebenen des Clusters

Ein Clustersystem wird wie in Abbildung 4.2 dargestellt, in vier unterschiedliche logische Ebenen unterteilt. Jede dieser Ebenen ist angewiesen auf die Funktionalität der unteren Basisebenen.

Die Hardware bildet die unterste Ebene. Darauf aufbauend wird das Betriebssystem mit den Systemdiensten angewendet, um die grundlegenden Funktionen bereitzustellen. Die Cluster-Ebene sowie die Anwendungsebene definieren die Funktionalität des Clusters, welche in den nachfolgenden Abschnitten näher beschrieben werden.



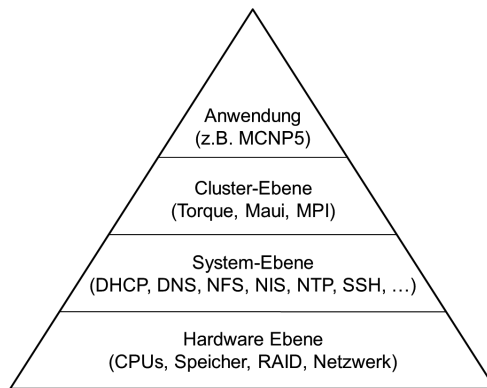


Abbildung 4.2: Die vier logischen Ebenen eines Cluster-Systems

### 4.2.1 Hardware-Ebene

Die Hardware-Ebene ist die grundlegende Ebene des Systems. Die Wahl der Hardwarekomponenten und Netzwerktopologie beeinflussen maßgeblich das Verhalten der höher liegenden Cluster-Ebenen und deren Funktionalität. Wie schon bei dem ursprünglichen Beowulf-Cluster, besteht das Rechensystem aus separaten Arbeitsplatzrechnern.

Prozessoren mit mehreren Prozessorkernen gewannen in den letzten Jahren durch deren Verbreitung im Endkundengeschäft weiter an Bedeutung. Die Unterschiede in der Speicherarchitektur sind in Abbildung 4.1 dargestellt. Demnach teilten sich mehrere Prozessorkerne einen gemeinsamen Speicherbereich. Diese Mehrkernprozessoren eignen sich besonders gut für den Einsatz in Clustersystemen, da diese über ein sehr gutes Preis-Leistungsverhältnis verfügen. Ein zusätzliches Designziel ist, dass die Rechner des Clusters auch als einzelne Arbeitsplatzrechner für das Institut nutzbar sind. Wenn eine Neuinstallation oder Austausch von älteren Rechnern notwendig wird, können die Rechner aus den Cluster verwendet werden, um einen kurzfristigen Bedarf zu decken. Die Abbildung 4.3 zeigt schematisch den Hardwareaufbau des Clusters.

Ein Rechner fungiert als Steuerrechner, auch als "Head-Node" bezeichnet. Die Funktion dieses Rechners wird in Abschnitt 4.2.3 beschrieben. Die Hardwareausstattung der Rechner ist in Tabelle 4.1 hinterlegt. Nachfolgend wird die Bezeichnung Node für einen Rechner des Clusters verwendet, die Bezeichnung Core ist gleichbedeutend mit einem Kern des Prozes-

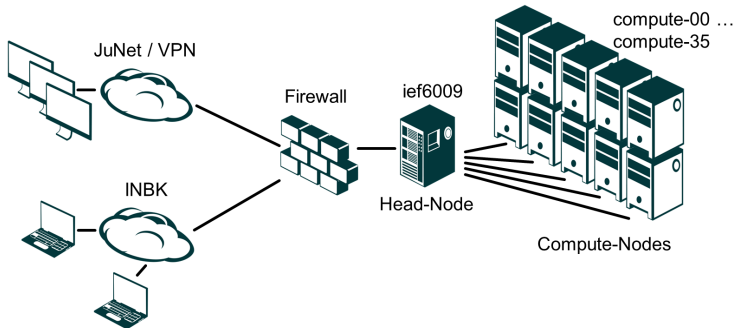


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung des Cluster-Systems

Tabelle 4.1: Hardwareausstattung der Rechner

| Merkmal        | Compute-Node     | Head-Node           |
|----------------|------------------|---------------------|
| Prozessor      | AMD Phenom II X6 | 2 * Intel Xeon 5420 |
| Prozessorkerne | 6                | 8                   |
| Speicher       | 12 GB            | 32 GB               |
| Festplatte     | 250 GB           | 3 TB                |

sors. Sowohl die Netzwerke des Forschungszentrums als auch das Verbindungsnetzwerk des Clusters sind physikalisch von einander getrennt. Dieses geschieht, um eine Beeinflussung der Rechner von außen zu vermeiden und den Zugang zu den Rechnerressourcen gebündelt über den Head-Node zu verwalten.

Der Hauptrechner verfügt sowohl über eine Verbindung zum Netzwerk des Forschungszentrums als auch zu dem des Clusters. Die Benutzer melden sich zentral an diesem Rechner an, um Zugang zu den Ressourcen des Clusters zu erhalten und die Rechneraufträge an das System zu übermitteln. Da dieser Rechner die zentrale Komponente des Clusters darstellt, ist diese Maschine als kompaktes Serversystem ausgelegt. Um eine möglichst große Verfügbarkeit der Ressourcen sicherzustellen, sind geeignete Maßnahmen zu treffen. Das Betriebssystem und die Daten der Benutzer sind auf Festplatten-Subsystemen gespeichert. Die Daten des Betriebssystems werden gespiegelt auf zwei Festplatten vorgehalten.

Diese Art der Datenreplikation wird auch als RAID-1 bezeichnet. RAID ist das Akronym für das englische "Redundant Array of Independent Disk". Im Falle eines Hardware Schadens in einer der Festplatten kann bis zum Austausch der defekten Platte der Betrieb des

Systems mit kleinen Einschränkungen weiterlaufen. Nach Austausch der Festplatte wird eine Replikation der Daten automatisiert durchgeführt. Die Replikation führt jedoch zu Performance-Einbußen.

Sowohl die Nutzerdaten als auch die angewendeten Programme liegen auf einem separaten Laufwerk, welches einen Verbund aus vier Festplatten darstellt. Um eine höhere Performance bei Zugriffen auf die gespeicherten Daten und auch einer hohen Datensicherheit zu gewährleisten, kommt für den Datenbereich das RAID-5 zum Einsatz.

Diese RAID-Variante nutzt nur  $(n - 1)/n$  der zur Verfügung stehenden Festplattenkapazität für die Speicherung der Daten,  $1/n$  der Kapazität wird für die Sicherung der Parität verwendet. Die Daten sind blockweise über alle Festplatten verteilt und es wird zusätzlich eine Parität gesichert. Diese Parität stellt im engeren Sinne eine Kontrollsumme der Daten dar. Im Falle eines Hardwaredefekts kann aus den verbleibenden Daten und der Parität das fehlende Fragment bestimmt werden.

Die effektiv nutzbare Festplattengröße ermittelt sich aus der Summe der sich im dem Verbund befindlichen Festplatten abzüglich der Festplattenkapazität für die Paritätsdaten. Somit stehen den Benutzern von 4,0 TB Gesamtspeicher netto 75,0 % für die Nutzerdaten zur Verfügung.

Eine weitere Sicherheitsmaßnahme stellt die unterbrechungsfreie Stromversorgung dar. Bricht durch externe Umstände die Stromversorgung zusammen, schaltet die unterbrechungsfreie Stromversorgung auf Akkubetrieb um. Somit werden die Server weiter mit Strom versorgt. Kommt innerhalb von 10 Minuten die Hauptstromversorgung nicht zustande, wird der Head-Node automatisiert herunter gefahren, um einen größeren Datenverlust zu vermeiden.

Die Compute-Nodes sind hingegen nicht separat abgesichert. Im ungünstigsten Fall wären die Ergebnisse der letzten Simulationen verloren, aber der Hauptteil der Daten sicher auf dem Head-Node verwahrt. Das Verbindungsnetzwerk des Clusters besteht aus einem Gigabit-Ethernet. Um eine möglichst große Bandbreite zwischen dem Hauptrechner und den Compute-Nodes zu gewährleisten, sind zwei Netzwerkschnittstellen durch Bündelung zusammengelegt. Für das Betriebssystem werden diese Schnittstellen als ein eigenständiges Netzwerkgerät angesprochen. Somit steigt die theoretische Maximalbandbreite von ein auf zwei Gigabit/s. Dies ist notwendig, wenn mehrere Rechner gleichzeitig Daten des

Hauptrechners abfragen, da es hier sonst zu Engpässen der Netzwerkbandbreite kommen kann.

Im Rahmen der Systemevaluierung wurden Transferraten von bis zu 1,8 GBit/s gemessen. Bei 35 in Betrieb befindlichen Compute-Nodes umfasst das Cluster 210 Prozesskerne, die für die Simulationen genutzt werden. Die Hardwarearchitektur des Clusters ist eine Mischung aus der im Abschnitt 4.1 besprochenen shared- und distributed-memory Architektur, da sich mehrere Prozessorkerne eines Rechnerknotens einen gemeinsamen Speicherbereich teilen, aber durch den Netzwerkverbund auch eine verteilte Speicherlandschaft vorliegt. Diese Hybrid-Architektur findet Beachtung bei der Planung und Konzeptionierung der Cluster-Ebene.

#### **4.2.2 Aufbau und Funktion der System-Ebene**

Die Systemebene umfasst sowohl das Betriebssystem als auch die Dienste, die der Head-Node dem Cluster zur Verfügung stellt. Wie auch das Cluster-Computing, hat das freie Betriebssystem GNU/Linux in den letzten Jahren an Bedeutung gewonnen. In der TOP-500-Liste von November 2011 werden mehr als 80% aller Supercomputer weltweit mit diesen freien Betriebssystemen eingesetzt. Vor zehn Jahren lag der Anteil bei gerade 7,6%, demgegenüber lag der Anteil an Hersteller-spezifischen UNIX<sup>TM</sup>-Systemen wesentlich höher.

Das Betriebssystem umfasst eine Vielzahl von Programmen, die als Open-Source-Produkte entwickelt werden. Die Auswahl der Programme ist spezifisch für die jeweilige Linux Distribution. Linux bezeichnet strenggenommen nur den Kernel des Betriebssystems. Die Bedienung von GNU/Linux ist an das ursprüngliche UNIX<sup>TM</sup>-System angelehnt.

Im Rahmen einer Auswahlstudie wurde das LINUX-Derivat Gentoo für das Cluster ausgewählt<sup>1</sup>. Die Philosophie des Gentoo unterscheidet sich maßgeblich von den anderen LINUX-Derivaten, wie beispielsweise OpenSUSE oder Ubuntu. Die Software wird nicht, wie in anderen Systemen üblich, als vorkompiliertes Binärpaket installiert, sondern jede Software lässt sich aus dem Quellcode des Programms kompilieren. Dieses Vorgehen ermöglicht es, die Software speziell an die Bedürfnisse des Benutzers oder des Systems anzupassen. Beispielsweise ist es für das Cluster nicht notwendig, dass die Rechnerknoten eine graphische

---

<sup>1</sup>Homepage des Gentoo-Projekts: <http://www.gentoo.org> - Juli 2014

Umgebung nutzen. Daher werden alle Module für eine graphische Benutzerinteraktion aus den Programmen entfernt. Es lassen sich viele Programme anpassen, da bereits bei der Kompilierung die Unterstützung ausgelassen wird. Dies führt zu geringeren Dateigrößen und zu einer Reduzierung der Abhängigkeiten. Nachteilig bei diesem Vorgehen ist, dass eine Programminstallation zeitaufwändiger ist, als die direkte Installation als Binärpaket. Um diese Einschränkung zu minimieren, kommt für den Cluster ein Build-System zum Einsatz. Dieser Rechner kompiliert die Softwareprodukte vor und speichert diese als Installationsdateien auf dem Head-Node ab. Im Fall einer Neuinstallation ist daher nur ein Kompilierungsprozess notwendig, da alle übrigen Rechner auf die erzeugten Installationsdateien zugreifen.

Entscheidend für den Betrieb eines Clusters ist, dass sich für den Benutzer jeder der Computer-Nodes gleich verhält. Daher ist es zwingend notwendig, dass die Benutzerrechte, Umgebungsvariablen, Datenbasis und die ausführbaren Programme auf allen Rechnern identisch vorliegen. Um eine konsistente Verteilung der Daten auf den Rechnerknoten zu erreichen, sind sowohl die Benutzerverzeichnisse als auch die Programme auf dem Hauptrechner hinterlegt. Durch den Einsatz eines Netzwerkdateisystems, im Englischen als "network file system" (NFS) bezeichnet, werden die Daten an die Rechnerkonten verteilt. Die

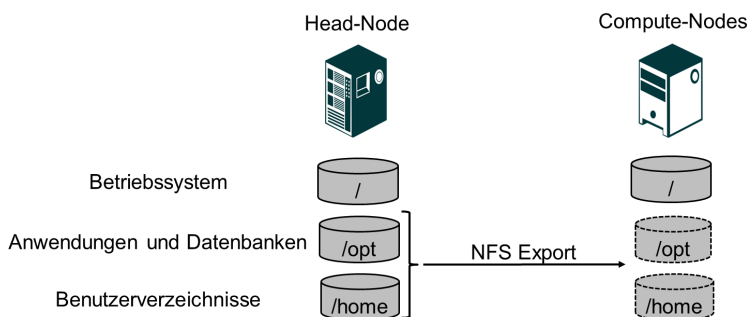


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung des Cluster-Systems

Abbildung 4.4 zeigt die systematische Darstellung des Netzwerkdateisystems. Über das Netzwerkdateisystem hinaus stellt der Head-Node eine Vielzahl von Diensten für den ordnungsgemäßen Betrieb des Clusters zur Verfügung.

Eine detaillierte Beschreibung jedes Dienstes liegt außerhalb des Rahmens dieser Arbeit. Jedoch sollen die Dienste besprochen werden, die für den Betrieb des Systems zwingend

erforderlich sind.

Der Zugriff auf die unterschiedlichen Anwendungen und Benutzerdaten werden durch die Benutzerrechte gesteuert. Um einen homogenen Zugriff auf die Daten von allen Rechnern aus zu gewährleisten, ist es notwendig, die Benutzerrechte auf die Rechner zu übertragen. Für diesen Zweck wird ein NIS-Verzeichnisdienst (Network Information System) eingesetzt<sup>2</sup>.

Diese Software bündelt alle notwendigen Informationen, wie Benutzernamen, Gruppen und Rechte, in Form einer Datenbank. Auf den Compute-Nodes wird der entsprechende NIS-Client ausgeführt, welcher die Datenbank als Server abfragt. Mit diesem Vorgehen ist es möglich, die Benutzerverwaltung zentralisiert auf dem Head-Node zu administrieren und den Compute-Nodes wird ausschließlich die Datenbank zur Verfügung gestellt. Der Zugriff über das Verbindungsnetzwerk auf die Compute-Nodes erfolgt über eine verschlüsselte SSH-Verbindung<sup>3</sup>. Die Programme der Cluster-Ebene arbeiten teilweise mit dieser Verbindungsart.

Typischerweise erfolgt die Verwendung der LINUX-Konsole interaktiv, indem der Benutzer die Befehle direkt an die Konsole übergibt. Im Fall einer SSH-Verbindung kann der Benutzer interaktiv oder durch Skripte gesteuert auf die Konsole eines sich im Netzwerk befindlichen Rechners zugreifen und dort seine Befehle ausführen. Diese Funktionalität ist für die Clusterumgebung von entscheidender Bedeutung (siehe Abschnitt 4.2.3).

Es bleibt festzuhalten, dass die Hardware- und Systemebene gemeinsam das Verhalten der Cluster-Ebene durch die getroffenen Designentscheidungen beeinflusst.

### 4.2.3 Funktion der Cluster-Ebene

Die bisher besprochenen Ebenen eines Cluster-Systems sind die Grundlage für die Funktionalität des Systems. Erst die Cluster-Ebene erzeugt aus dem losen Verbund von einzelnen Workstations ein integriertes Rechnersystem.

Hierbei sind zwei Eigenschaften von besonderer Bedeutung: Die Verwaltung der Cluster-Ressourcen und die Sprachschnittstelle für die Kommunikation zwischen Prozessen auf

---

<sup>2</sup>Webseite der NIS-Software: <http://www.linux-nis.org/> - Juli 2014

<sup>3</sup>Webseite des OpenSSH-Projekts: <http://www.openssh.com/> Stand Juni 2014

unterschiedlichen Rechnern.

Die Wahl des Cluster-Management-Systems basiert auf einem praktischen Vergleich unterschiedlicher Systeme. Die Kriterien für diesen Vergleich lauten:

- Wartungsfreundlichkeit
- Erweiterbarkeit
- Lizenzkosten der Software

Für den Vergleich kommen die Produkte Sun-Grid-Engine (SGE), vgl. (Montero u. a., 2011), der Firma Oracle sowie das Open-Source-Programm Torque (Resources, 2009) in Betracht. Die Torque-Software ist eine Fortführung des ursprünglichen PBS-Projekts, welches von der NASA ebenfalls zur Zeit des Beowulf-Projekts entwickelt wurde.

Sowohl Sun-Grid-Engine als auch Torque sind Batch-Job-Management-Systeme. Über ein Einstellungsskript wird dem Managementsystem mitgeteilt, welche Ressourcen das Programm benötigt und was im Verlauf des Skripts gesteuert wird. Der Scheduler (Planer) der Systeme versucht anhand der spezifizierten Angaben die entsprechenden Ressourcen zuzuteilen. Im Anschluss wird auf einer Untermenge aller Ressourcen das Programm gestartet. Sind weniger Ressourcen verfügbar als der Benutzer spezifiziert, wird der Job in eine Warteschlange (engl. "Queue") eingereiht. Erst wenn die geforderte Menge an Ressourcen zur Verfügung steht, wird mit der Ausführung begonnen. Diese Form der Ressourcenverwaltung wird sowohl von der Sun-Grid-Engine als auch Torque unterstützt. Um eine Entscheidung zu treffen, welche Software eingesetzt werden sollte, wurden die Lizenzbedingungen und Entwicklungszyklen miteinander verglichen. Sowohl bei Torque als auch der Sun-Grid-Engine stehen Open-Source-Produkte zur Verfügung. Die Entwicklungszyklen von Torque sind einige Wochen, wohingegen bei der Grid Engine fast ein Jahr keine Updates erschienen. Von der Bedienung der Job-Management-Systeme sowie der Stabilität beider Produkte ließ sich bei der Voruntersuchung keine signifikanten Unterschiede feststellen. Die Auswahl des Job-Management-Systems fiel auf Torque. Mit Torque wird ein Projekt ausgewählt, welches aktiv weiterentwickelt wird und somit für den langfristigen Einsatz gute Chancen bietet. Zudem lässt es die Möglichkeit offen je nach zukünftiger Anforderung an den Cluster, auch auf eine Variante mit Wartungsvertrag zu schwenken.

In den nachfolgenden Absätzen wird die Funktionsweise des Job-Management-Systems und

dessen Konfiguration besprochen. Um eine möglichst effiziente Verteilung der Arbeitspakete auf die verfügbaren Ressourcen des Clusters zu gewährleisten, sind vier unterschiedliche Warteschlangen definiert. Abhängig von den Anforderungen der Simulationsprogramme sind entsprechende Randbedingungen für die Warteschlangen festgelegt.

Die Simulationsprogramme, die über keine Parallelisierungstechniken im Quellcode verfügen, lassen sich nur auf einem Prozessorkern sequenziell ausführen. Solche Programme profitieren aber auch indirekt vom Design des Clusters, da eine Vielzahl dieser gleichartigen Simulationen zeitgleich auf den Compute-Nodes ausgeführt werden können. Dies ermöglicht beispielsweise die Variationsrechnung für einen Satz von Parametern, wobei jede der Simulationen sequenziell und unabhängig von den übrigen ausgeführt wird. Die Warteschlange für diese Art von Aufgaben limitiert das Einstellen von Jobs mit nur einem angeforderten Prozessorkern.

Insgesamt stehen jedem Nutzer maximal 60 Kerne zur Verfügung. Diese Maximalanzahl wurde aus Leistungsmessungen des Clusters ermittelt, die im Abschnitt 4.3 dargestellt sind.

Die nächst größere Queue bezieht sich auf Programme, die auf einer shared-memory-Parallelisierung basieren. Beispiele für eine solche Parallelisierungstechnik ist der Einsatz von Threads oder die Anwendung von OpenMP-Direktiven im Quellcode (Hoefflinger u. a., 2001). Beide Methoden zielen darauf ab, dass die Daten in einem von den Prozessorkernen gemeinsam genutzten Speicherbereich vorliegen und somit direkt zugreifbar sind. Grundlegend bleibt auch hier die Einschränkung, dass der Laufzeitgewinn durch die Anwendung nebenläufiger Algorithmen stark von der Implementierung abhängig ist.

Als Randbedingungen für die Queue von Shared-Memory-Programmen kann festgehalten werden, dass maximal sechs Kerne angefordert werden dürfen. Dies entspricht gerade der Maximalanzahl pro Rechner wodurch nur ein Job pro Rechner zur Ausführung kommt.

Eine Warteschlange ist speziell für den produktiven Einsatz und distributed-memory-Parallelisierung abgestimmt. Ziel ist es, sowohl die Anzahl der Rechnerkerne als auch die Anzahl der verwendeten Rechner zu spezifizieren. Die Parametrisierung der Queue ist so ausgelegt, dass pro Rechner die maximal möglichen sechs Kerne zur Verfügung gestellt werden und darüber hinaus kann der Benutzer bis zu fünf der Rechner für eine Simulation zuteilen. Dem Programm stehen somit bis zu 30 Kerne zur Verfügung.



Die Zuteilung der Prozesskerne auf das Parallelisierungsmodell ist für die Job-Management-Software unerheblich. Die 30 Prozessorkerne können sowohl durch einzelne Prozesse als auch als Hybrid zwischen Prozessen und Threads adressiert werden. Im Abschnitt 4.3 wird die unterschiedliche Aufteilung beschrieben und für einen Leistungsvergleich dargestellt.

Während des produktiven Betriebs des Clusters zeigte sich eine Schwierigkeit mit dem Simulationsprogramm SCALE. Die unterschiedlichen SCALE-Kontrollroutinen legen während der Laufzeit des Programms eine Vielzahl von temporären Dateien an, um Zwischenergebnisse zwischen den einzelnen Programmmodulen auszutauschen. Legt der Benutzer nun fest, dass die temporären Dateien in einem Ordner unterhalb seines eigenen Verzeichnisses angelegt werden, so erzeugt dies große Lastzustände auf dem Head-Node, da die Benutzerverzeichnisse wie in Abschnitt 4.2.2 besprochen als Netzwerkfreigabe durch den Head-Node an das Clustersystem exportiert werden. Sind mehrere SCALE-Simulation in das Clustermanagementsystem eingestellt, kommt es durch die häufige Anfrage zu einem Überlastproblem.

Als kurzfristige Lösung wurde eine neue Queue eingerichtet, die speziell für SCALE-Simulationen gedacht ist. Diese Queue verhindert, dass zu viele SCALE-Simulationen gleichzeitig gestartet werden können.

Die abschließende Warteschlange ist nicht für den produktiven Einsatz, sondern ausschließlich für Testzwecke bestimmt. Diese Queue besitzt keine Limitierung in den verwendeten Ressourcen und eignet sich aus diesem Grunde für die Fehlersuche und Leistungsbeurteilung. Tabelle 4.2 fasst die Parameter der eingestellten Queues zusammen.

Tabelle 4.2: Parameter der TORQUE-Queues, alle Werte sind bezogen auf einen Job und Benutzer

| Warteschlange | Kerne | Nodes | Ausgeführte Jobs | In Warteschlange |
|---------------|-------|-------|------------------|------------------|
| small_queue   | 1     | 1     | 60               | 200              |
| inter_queue   | 6     | 1     | 10               | 100              |
| mcnp_queue    | 30    | 5     | 2                | 300              |
| scale_queue   | 1     | 1     | 5                | 300              |
| test_queue    | –     | –     | 1                | 10               |

In der Einleitung dieses Kapitels wurde bereits die Notwendigkeit einer Sprache für die Kommunikation zwischen Prozessen und verteilten Speichern erörtert. Das "Message Pas-

sing Interface“ (MPI) ist ein festgelegter Standard für den Nachrichtenaustausch zwischen verteilten Prozessen (Gropp u. a., 1996). Der Standard legt den Sprachumfang, auch Semantik genannt, fest. Im Bereich der Open Source-Programme existieren unterschiedliche Implementierungen dieses Standards. Für den Cluster wurde die MPICH-2<sup>4</sup> Implementierung des MPI-Standards ausgewählt, diese ist sowohl mit Torque und dessen Umgebungsvariablen kompatibel, besitzt darüber hinaus auch eine Kompatibilität mit den angewendeten Simulationsprogrammen.

Zusammenfassend ist der Cluster in der Lage durch die Auswahl des Cluster-Management-Systems Torque und den vorbereiteten Abhängigkeiten für MPI-basierte Anwendungsprogramme, unterschiedliche Simulationsprogramme mit verschiedenen Hardwareanforderungen auf die zur Verfügung stehenden Ressourcen des Clusters zu verteilen.

#### 4.2.4 Anwendungsebene

Wie in den letzten Abschnitten bereits erwähnt wurde, befinden sich in der Anwendungsebene des Clusters die Simulationsprogramme, die auf die Ressourcen des Clusters zugreifen können. Die für diese Arbeit notwendigen Rechenprogramme sind im Detail in Abschnitt 3.2 besprochen. Tabelle 4.3 fasst zusammen, welche Parallelisierungsmethoden die einzelnen installierten Softwareprodukte beinhalten und welche Warteschlangen für die Verteilung dienlich sind. Die OpenMP-Methode zielt auf die Parallelisierung von Programmen für Architekturen mit gemeinsam genutzten Speicherbereichen. MPI hingegen kann sowohl für gemeinsam als auch verteilte Speicher genutzt werden, vgl. Abbildung 4.1.

Tabelle 4.3: Parallelisierungsmethoden der Simulationprogramme

| Programm         | Parallelisierung | Warteschlange             |
|------------------|------------------|---------------------------|
| SCALE-6.0        | keine            | small_queue & scale_queue |
| SCALE-6.1 (NEWT) | OpenMP           | inter_queue & scale_queue |
| MCNP5 1.51       | OpenMP + MPI     | mcnp_queue                |
| MCNP/X 27d       | MPI              | mcnp_queue                |

<sup>4</sup>MPICH-2 Homepage: <http://www.mcs.anl.gov/research/projects/mpich2/> - Stand Mai 2012

### 4.3 Leistung und Effizienz

Die Leistungsfähigkeit des Clustersystems wird mittels synthetischer und anwendungsspezifischer Benchmarks untersucht. Dies dient der Gewährleistung, dass sich das System zur Beschleunigung der erwarteten Rechenaufträge eignet.

Als synthetische Benchmarks kommt die "NASA Parallel Benchmark" Software zum Einsatz (Bailey, 2010). Diese Software beinhaltet unterschiedliche Berechnungstests, deren numerische Lösungsverfahren denen aus Anwendungsprogrammen entsprechen. Mit diesen Tests lässt sich gezielt das Verhalten eines Systems auf die erwarteten Anwendungsprogramme und ihre Anforderungen überprüfen. Die Berechnungstests decken eine Vielzahl von unterschiedlichen Methoden ab. Im Verlauf dieser Evaluierung werden drei Tests angewendet. Der hauptsächliche Anwendungsfall für das Clustersystem ist die Berechnung von Monte-Carlo-Simulationen in den Bereichen der Reaktorphysik und der Lösung des Teilchentransports. Die Anwendung des EP-Benchmarks, EP steht in diesem Fall für das Englische "Embarrassing Parallel", bezieht sich auf die Generierung von Pseudozufallszahlen, wie sie auch bei der Monte-Carlo-Simulation Anwendung finden. Insgesamt werden  $2^{33}$  Pseudo-Zufallszahlen generiert. Dieser Test besitzt eine zu vernachlässigende Nebenkommunikation, da jeder der  $N$ -Prozesse  $2^{33}/N$  Zufallszahlen generiert, die erst nach Beendigung aller Rechnungen als Ergebnisse kombiniert werden. Daher ist zu erwarten, dass die Laufzeitreduktion zur Anzahl der angewendeten Prozessorkerne linear proportional ist. Das Verhalten des EP-Benchmarks ist in Abbildung 4.5 dargestellt.

Die Laufzeitreduktion entspricht näherungsweise dem theoretischen Maximum. Der Test belegt, dass die verschiedenen Rechnerknoten des Clusters sich in ihrer Leistungsfähigkeit nicht unterscheiden. Dieser Test weicht jedoch von der Realität ab, da in jedem Simulationsprogramm Bereiche des Codes existieren, die entweder schlecht oder gar nicht zu parallelisieren sind, insbesondere wenn eine Kommunikation zwischen den einzelnen Rechnern notwendig ist, um Zwischenergebnisse auszutauschen.

Aus diesem Grund werden zwei weitere Tests des NASA-Benchmarks in Betracht gezogen, die ein lineares Gleichungssystem lösen. Der LU- bzw. der CG-Benchmark berechnen aus einer dünnbesetzten Matrix die entsprechenden Eigenwerte. Als Lösungsalgorithmen kommen im Fall des LU-Benchmarks das Gauß-Seidel-Verfahren und für den CG-Benchmark das Verfahren der konjugierten Gradienten zum Einsatz (Bailey, 2010). Beide Algorithmen

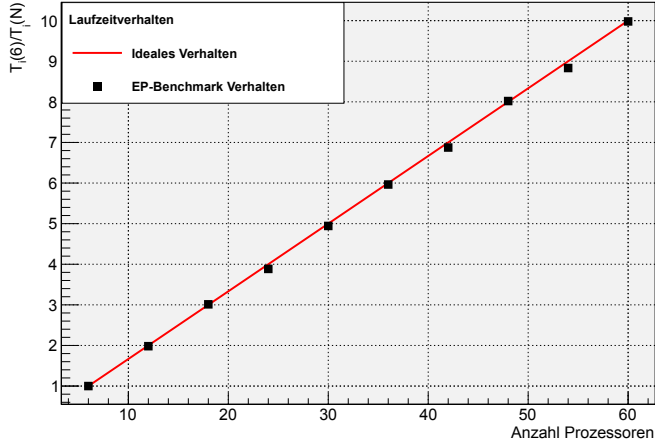


Abbildung 4.5: Laufzeitverhalten des EP-Benchmarks

dienen zur Lösung des Gleichungssystems.

Die Implementierung der Algorithmen erfordert deutlich mehr Nebenkommunikation der beteiligten Prozesse, da die Daten voneinander abhängig sind. Dieser höhere Kommunikationsbedarf zwischen den beteiligten Prozessen führt dazu, dass es einen größeren Anteil an sequenziellen Code-Passagen gibt, die nicht parallel unabhängig von einander ablaufen können. Das geänderte Laufzeitverhalten ist in Abbildung 4.6 dargestellt. Bei nicht vernachlässigbarer Nebenkommunikation weicht die maximal erreichbare Laufzeitreduktion vom theoretischen Optimum ab. Die Gesamtlaufzeit eines Programms ist gegeben durch die Summe aus der Laufzeit in den sequenziellen Code-Passagen und der Laufzeit des parallelisierten Codes. Die Beschleunigung des Codes durch den Einsatz von mehreren Prozessorkernen ist gegeben durch das Verhältnis der Laufzeit auf einem Node, bzw. Prozessorkern,  $T_1$  und der Laufzeit auf einer beliebigen Anzahl von Nodes  $T_N$ :

$$S = \frac{T_1}{T_N} \quad (4.1)$$

Betrachtet man sowohl die sequentiellen als auch parallelen Anteile der Laufzeit von Gleichung 4.1, so stellt man fest, dass der sequentielle Anteil maßgeblich für die Abweichung

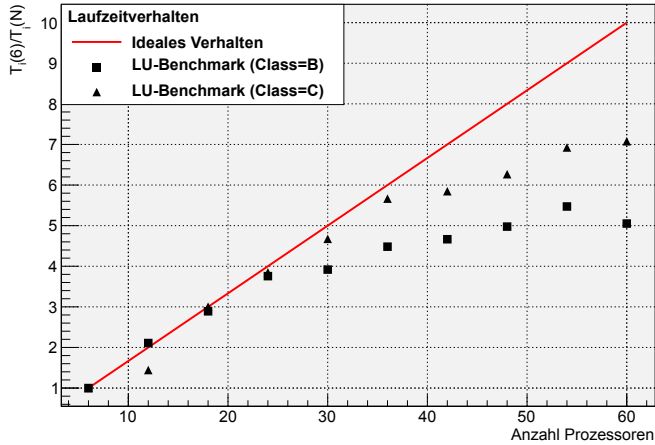


Abbildung 4.6: Laufzeitverhalten des LU-Benchmarks

verantwortlich ist.

$$S = \frac{T_1}{\sigma + \pi/N} \quad (4.2)$$

Die Laufzeit des parallelisierbaren Anteils  $\pi$  des Programms wird durch die Anwendung von mehreren Rechenkernen reduziert, der sequentielle Teil  $\sigma$  bleibt konstant. Daher stellt das Verhältnis zwischen parallelisierten und sequentiellen Code den limitierenden Faktor dar. Darüber hinaus ist die Laufzeitreduktion von der Problemgröße abhängig. Die Implementierung des NASA-Benchmarks sieht für alle Tests unterschiedliche Problemgrößen vor. Die Problemklasse B umfasst eine Systemmatrix mit  $102^3$  Elementen, wohingegen die Problemklasse C eine Systemmatrix mit  $162^3$  Elementen abbildet. Im Falle der größeren Matrix liegt die maximale Laufzeitreduktion bei näherungsweise dem Faktor 7, im Fall der kleineren Systemmatrix liegt der Faktor bei 5,5. Auch die Abweichung von der Linearität geschieht bei der größeren Matrix später. Erwähnenswert ist, dass sowohl die Wahl der Lösungsalgorithmen als auch die Problemgröße einen Einfluss auf das Laufzeitverhalten eines parallelisierten Programms besitzen. Es zeigt sich, dass in Abhängigkeit der Problemgröße die optimale Anzahl an Prozessorkerne zwischen 30 und 36 liegt, bezogen auf den Benchmark.

Auf Basis dieser synthetischen Benchmarks wird im folgenden Abschnitt die Leistungs-

fähigkeit des Clusters für das Anwendungsprogramm MCNP5 untersucht (Forster u. a., 2003). Die ausführliche Beschreibung von MCNP5 erfolgt in Abschnitt 3.2.

MCNP5 löst das Problem eines Teilchentransports durch die Anwendung der Monte-Carlo-Simulation von unabhängigen Teilchenhistorien. Wie im EP-Benchmark werden dazu Pseudo-Zufallszahlen erzeugt, um aus den unterliegenden Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen bzw. Wechselwirkungsdaten die Reaktionen und Transportparameter abzuleiten. Als Modell des Benchmarks dient die Bestimmung der Dosisleistung eines Abfallgebundes für eine homogene Abfallzusammensetzung, dieses Modell wird im Detail in Abschnitt 5.2 beschrieben. Die Systemarchitektur ist wie in Abschnitt 4.1 besprochen ein Hybrid zwischen der "shared-" und "distributed-Memory"-Architektur.

Daher soll auch der Einfluss der Ausnutzung der Parallelisierungstechniken auf die zur Verfügung stehenden Prozessorkerne untersucht werden. Im Gegensatz zur MPI-Parallelisierung, die sich hauptsächlich für Systeme mit verteilten Speichern eignet, ist die OpenMP-Parallelisierung ausschließlich für Systeme mit geteilten Speicherbereichen gedacht. Generell sind zwei Möglichkeiten denkbar, um die Rechenaufgabe auf die Prozessorkerne zu verteilen. Durch einen reinen MPI-Modus wird jedem Prozessorkern jeweils ein separater MCNP-Prozess zugeordnet. Da Prozesse jedoch nicht auf einen gemeinsamen Speicherbereich zugreifen können, müssen für jeden Prozess einzeln die Wechselwirkungsdaten eingelesen und gespeichert werden, was zu einer deutlichen Zunahme des Speicherbedarfs führt.

Die zweite Möglichkeit ist die Anwendung der Kombination aus MPI- und OpenMP-Techniken. Hierbei wird auf jeweils einem Rechner mit sechs Prozessorkernen ein Prozess gestartet. Dieser Prozess kümmert sich um die Speicherverwaltung und das Einlesen der Wechselwirkungsdaten. Nach Abschluss der Initialisierung werden durch jeden Prozess sechs Threads für die Rechnung gestartet. Ein Thread ist immer einem Prozess zugeordnet, wodurch sich die Threads auf einem Rechner die geladenen Wechselwirkungsdaten teilen. Dies ist die optimale Konfiguration für die Berechnung mittels MCNP5, da sich im idealen Fall eine Speicherreduktion vom Faktor sechs im Vergleich zum einem auf Prozesse fixierten MPI-Modus einstellt. Dies ist von Vorteil vor allem für große Modelle, wie Abbrandrechnungen bezogen auf einen Viertelkern des Reaktors, da insgesamt weniger Daten vorgehalten werden müssen. Die Laufzeit zwischen der MPI-Variante und dem Hybrid zwischen MPI und OpenMP ist vergleichbar.

Das Laufzeitverhalten von MCNP5 zeigt, dass einige Codebereiche nur unzureichend par-

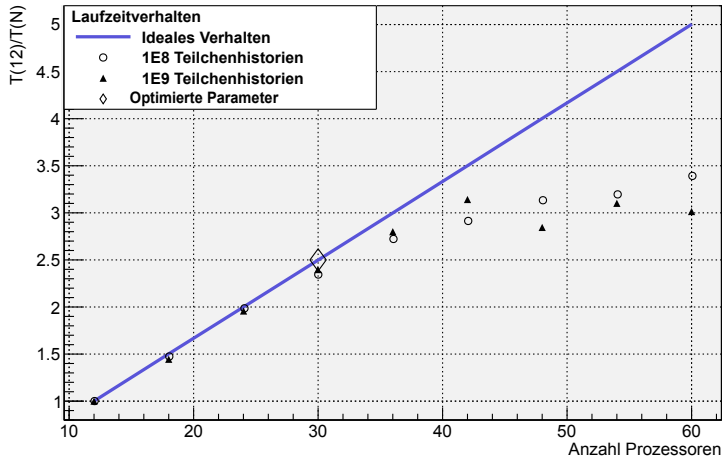


Abbildung 4.7: Laufzeitverhalten einer MCNP/X-Simulation

allelisiert sind. Dieses Verhalten kann auf mehrere Ursachen zurückgeführt werden. Zum einen kann es am hohen Kommunikationsaufwand zwischen den Prozessoren und Nodes liegen, zum Anderen aber auch an der zusätzlichen Synchronisation zwischen den Threads. Wie bereits im LU-Benchmark sichtbar, weicht das Verhältnis zwischen der Bezugslaufzeit und der Laufzeit mit höherer Anzahl an Prozessorkernen ab 36 deutlich von der Ideallinie ab.

MCNP5 besitzt einen nicht zu vernachlässigenden Anteil an Nebenkommunikation zwischen den Prozessen, da nach einer voreingestellten Anzahl an Teilchenhistorien oder Laufzeit die Ergebnisse zusammengefasst werden, um die Statistiken zu bestimmen. Dieses Verhalten lässt sich durch den Benutzer beeinflussen, indem die Anzahl der Synchronisationspunkte reduziert wird. Der optimierte Fall bei 30 Prozessorkernen in Abbildung 4.7 zeigt, dass die Wahl von weniger Synchronisationspunkten das Laufzeitverhalten zwar verbessert, aber auch die statistische Auswertung von MCNP5 zur Laufzeit beeinflusst. Aus den übermittelten Informationen an den Synchronisationspunkten werden mittels 10 statistischen Tests die Konvergenz des Problems überprüft (Sweezy, 2008). Wird die Anzahl der Synchronisationspunkte reduziert, ist im schlechtesten Fall keine Überprüfung auf die Konvergenz des Problems mehr möglich. Daher wird für die Benutzer empfohlen, die Standardparameter für MCNP5 zu verwenden. Gleichzeitig wird die Anzahl der für einen Rechenauftrag verfügbaren Prozessorkerne auf 30 eingeschränkt. Bei der gegebenen

Clusterkonfiguration entspricht dies 14% der Gesamtkapazität des Systems.

Die durchgeführten Tests haben gezeigt, dass das Clustersystem sich dazu eignet, die typischen Rechenaufträge zu beschleunigen. Hinsichtlich der maximalen Skalierungsfähigkeit der Anwendungsprogramme ist der interne Aufbau der Programme entscheidend, ob viele sequentielle Codebereiche die effiziente Parallelisierung beeinträchtigen. Der Cluster wurde auf die verschiedenen Parallelisierungstechniken der Anwendungsprogramme optimiert.

## 4.4 Statistiken zur Clusternutzung

Das Clustersystem wurde Ende des Jahres 2010 in Betrieb genommen. Die Benutzergruppe hat sich seit Beginn des Clusterbetriebs stetig erweitert. Zunächst lag die Anzahl der ständigen Benutzer bei drei Personen. Im Jahr 2011 verwendeten bereits acht Personen die Ressourcen des Clusters auf regelmäßiger Basis. Unter den acht ständigen Benutzern finden sich auch Mitarbeiter des ehemaligen Institut für nuklearen Brennstoffkreislauf (INBK) in Aachen. Die hauptsächlichen Anwendungsfelder sind hierbei Gamma- und Neutronentransportrechnungen, Abbrandrechnungen aber auch kristallographische Berechnungen (Querner u. a., 1991).

Aus der Statistik des Jahres 2011 geht hervor, dass an 268 Tagen Rechenaufträge an das Clustermanagementsystem übertragen wurden. Insgesamt wurden für das Jahr 2011 22.466 Aufträge verarbeitet. Davon entfallen 87 % an das IEK-6 und 13 % auf Mitarbeiter des INBK. Die verbrauchte Rechenzeit entspricht einer Systemauslastung im Jahr 2011 von etwa 72.000 Stunden. Bei 30 betriebsbereiten Systemen entspricht dies im Mittel einer Auslastung von näherungsweise 30 %, unter der Annahme, dass 30 Rechner aktiv und jeweils alle sechs Prozessorkerne ausgelastet sind. Da die Anzahl an Jobs auf einen konstanten Wert pro Benutzer limitiert sind, schränkt dies die effiziente Nutzung des Systems ein. Eine bessere Möglichkeit wäre der Einsatz von dynamischen Grenzen. Je nach Lastzustand des Clustersystems wird entschieden, ob ein Benutzer, der momentan mehrere Aufträge in der Warteschlange eingestellt hat, kurzfristig mehr Ressourcen zugeteilt bekommt, um seine Jobs zu beenden. Dieses Vorgehen würde den Anteil an ungenutzten Ressourcen reduzieren. Es erfordert aber einen höheren administrativen Aufwand. Wenn weitere Benutzer ihre Jobs an das System schicken ist es notwendig, die dynamisch angeforderten Ressourcen wieder freizugeben, die gestarteten Prozesse zu parken und die neuen Jobs zu starten. Diese



Verbesserungsmöglichkeiten wurden in Betracht gezogen, sind aufgrund von der administrativen Mehrarbeit jedoch vorerst nicht implementiert worden. Insgesamt hat sich das Clustersystem am IEK-6 als produktives Arbeitssystem etabliert. Nach einer Erweiterung des Clusters im Jahr 2013 ist es bis heute fast unverändert in Betrieb.

## 5 Validierung der Simulationsprogramme

Die Prognose von nuklearen Eigenschaften konditionierter Abfälle basiert häufig auf Ergebnissen von Simulationsprogrammen. Die angewendeten numerischen Programme können grundsätzlich in zwei Teilbereiche unterschieden werden: zum einen in die Reaktorphysikcodes zur Bestimmung der Abbrand-spezifischen Nuklidvektoren, zum anderen der Strahlungstransportcodes für die Berechnung der Gamma- und Neutronenspektren und den damit verbundenen Dosisleistungen. Für die spezifischen Aufgaben der Produktkontrolle für endzulagernde, konditionierte Abfälle müssen, wie in Kapitel 3 dargestellt, sowohl die Abbrandrechnung als auch der Teilchentransport für die Berechnung der Abfalleigenschaften miteinander gekoppelt werden, vgl. Abbildung 3.1. Für die Reaktorphysik und den Teilchentransport kommen international anerkannte und gut validierte Simulationsprogramme zum Einsatz. Dennoch bedarf deren Einsatz im Kontext des in dieser Arbeit entwickelten Kopplungssystems einer tiefgreifenden Evaluierung. Da teilweise keine direkten Vergleichsmöglichkeiten für die unterschiedlichen Aspekte bestehen, wird ein umfangreiches Benchmark-Programm durchgeführt, um die Qualität der integrierten Simulationsprogramme zu belegen.

### 5.1 Validierung der Abbrandrechnung

Als Reaktorphysikcode kommt SCALE in den Versionen 6.0 sowie 6.1 zum Einsatz. Die hauptsächlichsten Unterschiede der Versionen sind Aktualisierungen der Zerfallsbibliotheken. SCALE 6.0 nutzt die Evaluierungen aus der ENDF-B/VI-Bibliothek, wohingegen SCALE 6.1 die neueren Evaluierungen der ENDF-B/VII nutzt. Auf Grund der Abwärtskompatibilität des Kopplungssystems werden beide Codes angewendet. Generell ließen sich auch die Ergebnisse aus SCALE 5.1 verwerten, da diese dieselbe Struktur wie diejenigen aus SCALE 6.0 aufweisen. Da SCALE 6.0 die Funktionalität von 5.1 vollständig ersetzt, wurde dieses Feature nicht weiter betrachtet. Diese Software wird weltweit eingesetzt und seit nunmehr

30 Jahren aktiv weiterentwickelt (Bowman, 2011).

Im Fall der Abbrandrechnung werden drei Vergleichsrechnungen durchgeführt. Ein synthetischer Benchmark mit Vergleich zu anderen bekannten Reaktorphysikcodes sowie zwei Vergleiche mit gemessenen Nuklidvektoren aus der Analyse bestrahlter Brennstoffe zweier Brennelemente aus deutschen Kernreaktoren. Dieses Vorgehen reduziert die Möglichkeit von Bedienungsfehlern der komplexen Parametrierung der Modelle.

Die Ergebnisse fließen in ein Parametrierungssystem, welches es dem Benutzer erlaubt, die SCALE-Modelle automatisiert zu erzeugen, ohne auf die grafischen Benutzerumgebung GeeWiz<sup>1</sup> zurückzugreifen. Dies ermöglicht eine schnellere Implementierung von Variationsrechnungen. Diese neu entwickelte Software ist im Abschnitt 3.5 dargestellt.

### 5.1.1 Synthetischer Benchmark - NEA-6227

Eine Vorgehensweise bei der konservativen Bestimmung der Kritikalitätssicherheit eines abgebrannten Brennelements ist, dass diesem Element dieselbe Kritikalität unterstellt wird, wie für einen frischen Brennstoff (Dyck, 2001). Diese Überschätzung der Kritikalität würde zu überhöhten Sicherheitsvorkehrungen und somit auch zu erheblich größeren Kosten für Transport und die Zwischenlagerung führen.

Um den Einfluss der Reaktivitätsabnahme durch den fortschreitenden Abbrands zu beschreiben, sind Abbrandrechnungen notwendig. Ziel ist es, die Überdeklaration der kritikalitäts-relevanten Nuklide zu vermeiden, indem abbrand-spezifische Nuklidkonzentrationen bei der Berechnung der Kritikalität Anwendung finden. Im englischen Sprachraum wird dieses Vorgehen als "Burn-up credit" (BUC) bezeichnet. Die OECD/NEA-Expertengruppe "Burn-up credit criticality safety" entwarf einen Benchmark für den Vergleich unterschiedlicher Reaktorphysikcodes in Bezug auf die Vorhersage eines abbrandabhängigen Nuklidvektors und den damit verbundenen relevanten Nukliden für die Kritikalitätssicherheit (Barreau, 2006).

Dieser Benchmark ist aufgeteilt in zwei Bereiche:

- Ermittlung des Nuklidvektors unter Variation der Simulationsparameter
- Berechnung der Kritikalität in einem Transport- und Zwischenlagerbehälter

---

<sup>1</sup>Graphisches Konfigurationstool aus dem SCALE Softwarepaket.

In dieser Arbeit werden sechs der ursprünglich zwölf Fälle des Benchmarks behandelt und mit den Ergebnissen der Literatur verglichen.

Das geometrische Modell des Benchmarks orientiert sich an dem AREVA AFA 3G Brennelementdesign (Nuc, 2004). Das Brennelement besteht aus einem rechtwinkligen Gitter aus 17 x 17 Brennstabpositionen. Hiervon sind 264 Positionen mit Brennstäben bestückt, in weiteren 20 Positionen befinden sich Führungsrohre für Steuer- oder Instrumentierungsstäbe. Abbildung 5.1 zeigt den geometrischen Aufbau des Brennelements. Als Brennstoff

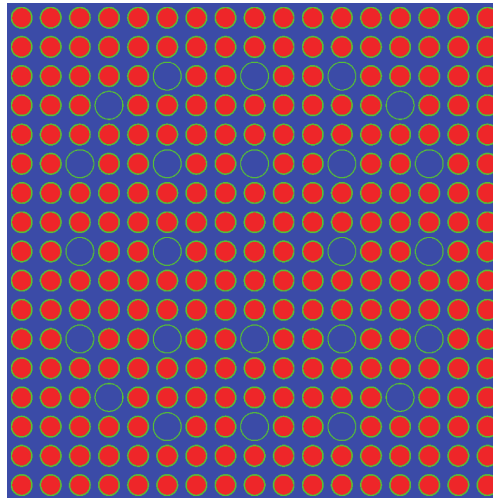


Abbildung 5.1: Layout des 17 x 17 Brennelements für die Vergleichsrechnung, eigene Darstellung (Barreau, 2006)

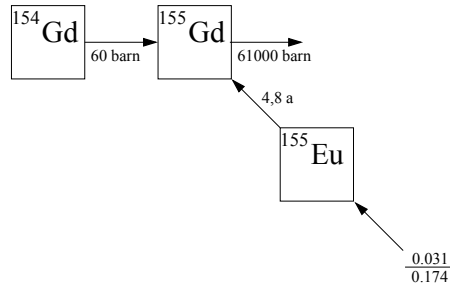
kommt Urandioxid mit einer anfänglichen Anreicherung von 4,0 Gew.%  $^{235}\text{U}$  zum Einsatz. Zum Vergleich mit den Literaturwerten wurden sechs Testfälle ausgewählt. Die Beschreibung der Fälle ist in Tabelle 5.1 zusammengefasst, die Nummerierung der Testfälle bezieht sich auf die Nomenklatur der Studie, um eine bessere Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu erreichen.

Als Steueroutine kommt, wie auch in dem späteren Verlauf der Arbeit, TRITON zum Einsatz. Die Funktionsweise von TRITON und den zugehörigen Funktionsmodulen ist im Abschnitt 3.2.1 dargestellt. TRITON koppelt die Neutronentransportcodes KENO und NEWT mit dem Abbrandcode ORIGEN-S. KENO berechnet anhand einer Monte-Carlo-Simulation von individuellen Neutronenhistorien die Flussverteilung innerhalb des Systems.

Tabelle 5.1: Ausgewählte Testfälle, die Fallnummern beziehen sich auf die vorgegebene Nummerierung der Studie (Barreau, 2006)

| Fallnummer | Zielabbrand GWd/ $t_{SM}$ | Steuerstäbe eingefahren? | Kühlzeit a |
|------------|---------------------------|--------------------------|------------|
| 1          | 30.0                      | nein                     | 0          |
| 2          | 30.0                      | ja                       | 0          |
| 3          | 45.0                      | nein                     | 0          |
| 4          | 45.0                      | ja                       | 0          |
| 9          | 30.0                      | nein                     | 5          |
| 11         | 45.0                      | nein                     | 5          |

Aus dieser Information in Verbindung mit der zuvor eingestellten spezifischen Leistung, lassen sich die problemabhängigen Reaktionsraten ableiten, die von ORIGIN-S verwendet werden, um Brennstoffverbrauch und Erzeugung der Minoren Actinoiden zu bestimmen. Die Neutronengifte in den Steuerstäben bewirken eine energetische Verschiebung im Neutronenspektrum, da ein Teil der thermischen Neutronen absorbiert wird. Aus diesem Grund verhärtet sich das Spektrum, wodurch die Spaltung des  $^{235}\text{U}$  vermindert und zugleich mehr Plutonium aufgebaut wird. Um den Effekt auf die Zusammensetzung des abgebrannten Brennstoffs zu maximieren, wird konservativ angenommen, dass die Materialien der Steuerstäbe selbst nicht durch Neutroneneinfangreaktionen transmutiert werden, sondern zeitlich konstant bleiben. Die Fälle 1 und 3 berechnen das Nuklidinventar bezogen auf einen spezifischen Abbrand von 30 bzw. 45 [GWd/ $t_{SM}$ ]. Die Ergebnisse dienen als Referenzwerte für die übrigen betrachteten Fälle. Für diese Fälle liegen die errechneten Werte im Schwankungsbereich der übrigen Reaktorphysikcodes. Insgesamt ist die Schwankungsbreite der Codes relativ gering mit einer mittleren Abweichung von  $\pm 5\%$ . Jedoch ist die statistische Unsicherheit der auf Monte-Carlo-Verfahren basierenden Codes in der Vergleichsstudie nicht dokumentiert (Barreau, 2006). Die Isotope  $^{155}\text{Gd}$ ,  $^{103}\text{Rh}$ ,  $^{109}\text{Ag}$  sowie  $^{243}\text{Am}$  weisen die größten Schwankungsbreiten beim Vergleich auf. Für  $^{155}\text{Gd}$  liegt die Unsicherheit zwischen den unterschiedlichen Codes zwischen 32 und 37 %, ohne Berücksichtigung der Kühlzeit. Diese Unsicherheit ist auch auf die geringe Konzentration von  $1,44 \cdot 10^{-9}$  [atoms/barn.cm] zurückzuführen. Abbildung 5.2 zeigt schematisch die möglichen Erzeugungswege für  $^{155}\text{Gd}$ .  $^{155}\text{Eu}$  besitzt eine Halbwertszeit von 4,8 Jahren, somit entsteht nur ein geringer Anteil des  $^{155}\text{Gd}$  während der Einsatzdauer im Kernreaktor. Durch die Spaltungen, die direkt zum  $^{155}\text{Gd}$  führen, dem verzögerten  $\beta^-$ -Zerfall aus dem  $^{155}\text{Eu}$  sowie der Neutroneneinfangreaktion im  $^{154}\text{Gd}$ , kann während der Standzeit im Reaktor das Isotop  $^{155}\text{Gd}$  entstehen.


 Abbildung 5.2: Erzeugungswege für  $^{155}\text{Gd}$ 

Des Weiteren führt die Wahl der angewandten Wechselwirkungsbibliotheken sowie ihre Vorverarbeitung, zum Beispiel Temperaturanpassung oder Resonanzselbstabschirmung, zu Variationen innerhalb des Vergleichs. Als Beispiel hierfür dienen die Ergebnisse der JNES- und JAERI-Studien. Diese setzen beide den Code MVP-ORBURN ein, welcher in ähnlicher Form wie SCALE die Neutronentransportcodes MVP mit ORIGEN koppelt (Barreau, 2006). Beide Teilnehmer setzen vergleichbare Wechselwirkungsbibliotheken ein, was durch die übereinstimmenden Werte belegt wird.

Ein Aspekt wurde innerhalb des NEA-6227-Benchmarks nicht besprochen, nämlich das Verhalten der auf Monte-Carlo-Simulationen basierenden Programme im Bezug auf die statistische Unsicherheit der Neutronentransportsimulationen. Die ermittelte Neutronenflussverteilung innerhalb des Systems wird durch die Verfolgung individueller Neutronenhistorien berechnet. Da pro Transportzyklus nur eine begrenzte Anzahl an Neutronen simuliert wird, ist die daraus ermittelte Neutronenflussverteilung und somit auch die Reaktionsraten innerhalb des Systems einer Unsicherheit unterworfen. Diese Unsicherheit führt dazu, dass durch die Kopplung zwischen dem Neutronentransportcode und dem Abbrandcode die ermittelten Nuklidkonzentrationen ebenfalls mit einer statistischen Unsicherheit behaftet sind.

Innerhalb des Vergleichsstudie setzen mehrere Teilnehmer des NEA-6227-Benchmarks Monte-Carlo-Verfahren für die Simulation des Neutronentransports ein, jedoch wird auf die dadurch bedingte Unsicherheit der ermittelten Nuklidkonzentrationen keine Angaben gemacht. Um die Auswirkung der statistischen Ungenauigkeiten der Neutronenflussbestimmung auf die Ergebnisse der Abbrandrechnung hin zu untersuchen, wurde mittels SCALE der erste Fall des Benchmarks unter Variation des Startwerts des Pseudozufallszahlengenerators

nerators simuliert. Hierzu wurden zehn Simulationen mit Variation des Startwerts und ansonsten konstanten Bedingungen wiederholt. Aus den Ergebnissen der zehn unabhängigen Läufe wurden für die betrachteten Nuklide sowohl der Mittelwert, als auch die Standardabweichung bestimmt. Dieses Vorgehen wurde zweimal wiederholt. Im zweiten Fall wurde die Anzahl an aktiven Neutronenhistorien um den Faktor 10 erhöht, das zu einer Reduzierung der statistischen Unsicherheiten führt. Die optimierte Parametrierung der Modelle dient dazu, eine hinreichende Konvergenz der Neutronenflusslösung zu erreichen. Tabelle 5.2 zeigt den Vergleich der beiden Simulationsreihen.

Tabelle 5.2: Vergleich der Ergebnisse mit Standardparametern und optimierten Parametern

| Isotop               | $\bar{x} \pm \sigma_x$ [kg]                   | R[%]   |
|----------------------|---|--------|
| Standardparameter    |   |        |
| $^{155}\text{Gd}$    | $2,91 \times 10^{-4} \pm 1,03 \times 10^{-6}$ | 0.353% |
| $^{235}\text{U}$     | $6,26 \times 10^0 \pm 3,38 \times 10^{-2}$    | 0.054% |
| $^{238}\text{U}$     | $3,95 \times 10^3 \pm 1,09 \times 10^{-1}$    | 0.003% |
| $^{239}\text{Pu}$    | $2,33 \times 10^1 \pm 6,58 \times 10^{-2}$    | 0.282% |
| Optimierte Parameter |   |        |
| $^{155}\text{Gd}$    | $2,87 \times 10^{-4} \pm 1,10 \times 10^{-7}$ | 0.038% |
| $^{235}\text{U}$     | $6,27 \times 10^0 \pm 3,93 \times 10^{-3}$    | 0.006% |
| $^{238}\text{U}$     | $3,95 \times 10^3 \pm 1,06 \times 10^{-2}$    | 0.001% |
| $^{239}\text{Pu}$    | $2,35 \times 10^1 \pm 6,81 \times 10^{-3}$    | 0.029% |

Durch die Wahl der optimierten Simulationsparameter, gegenüber den voreingestellten Standardwerten, sinkt die statistische Unsicherheit. Die relative Unsicherheit nimmt in allen Fällen fast um eine Größenordnung ab. Es bleibt zu erwähnen, dass durch die optimierten Parameter auch die Rechenzeit fast um eine Größenordnung zunimmt. Dies ist vor allem der Erhöhung der Anzahl an Neutronenhistorien geschuldet. Diese Abnahme der statistischen Unsicherheit sagt jedoch nur etwas über die Präzision der Rechnungen aus und nicht über die systematischen Fehler, die durch ungenaue Modellierung oder die Unsicherheiten der Wechselwirkungsquerschnitte entstehen. Die optimierten Parameter werden im Abschnitt 7.1 im Zusammenhang mit dem axialen Abbrands genauer beschrieben. Die Variation der Unsicherheiten der einzelnen Isotope ist auf die genauere Bestimmung des energiegruppenabhängigen Neutronenflusses zurückzuführen.

Aus dieser Untersuchung ist ersichtlich, dass ohne Angabe der Unsicherheiten der auf

Monte-Carlo-Programmen basierenden Ergebnisse keine Aussage über die statistische Genauigkeit getroffen werden kann. Auch die deterministischen Transportcodes, wie beispielsweise Beispiel APOLLO, WIMS oder NEWT (Barreau, 2006), sind nicht frei von Unsicherheiten. Üblicherweise wird ein Konvergenzkriterium für die Kritikalitätsrechnung festgelegt, somit sind auch die ermittelten Neutronenflüsse Unsicherheiten unterworfen (DeHart, 2006).

Im nächsten betrachteten Fall wird eine zusätzliche Zerfallsrechnung mit fünf Jahren Kühlzeit berechnet und daraus einige ausgewählte Nuklide betrachtet. Auch in diesem Test liegen die eigenen Simulationen im Erwartungsbereich der Studie. Die Variation von  $^{155}\text{Gd}$  bezogen auf den Mittelwert der Studie ist jedoch größer und übersteigt 45 %.

Innerhalb von fünf Jahren Kühlzeit nimmt die Konzentration von  $^{155}\text{Gd}$  um fast zwei Größenordnungen zu, dies ist durch den Zerfall von  $^{155}\text{Eu}$ , mit einer Halbwertszeit von 4,8 Jahren, zu erklären.

Für die Betrachtung der Kritikalitätssicherheit finden sowohl stabile Nuklide als auch solche mit langen Halbwertszeiten Anwendung. Daher werden an dieser Stelle nur die Isotope  $^{151}\text{Sm}$  und  $^{241}\text{Pu}$  genauer besprochen. Aus den Ergebnissen der Fälle 1 und 9 sowie 3 und 11 der Studie lassen sich die angewendeten Zerfallskonstanten der Nuklide ableiten. Hierbei muss jedoch dafür Sorge getragen werden, dass die Konzentration auf den Zeitpunkt der Betrachtung korrigiert wird, da durch mehrfachen Zerfall der Nuklide entlang der Isobaren 151 einen Beitrag zur ursprünglichen  $^{151}\text{Sm}$ -Konzentration liefern. Die mittlere Halbwertszeit errechnet sich nach Korrektur zu 87,9 Jahren. Die JEF-2.2 sowie JENDL- Datenbanken ist für  $^{151}\text{Sm}$  von 88,7 Jahren hinterlegt. Für neuere Evaluierungen, wie beispielsweise der ENDF-B/VII.0, sind es nach aktuellem Stand 90,0 Jahre. Die gleiche Analyse wurde für  $^{241}\text{Pu}$  wiederholt, mit dem Ergebnis, dass in diesem Fall die errechneten und die aus der Literatur bekannten Halbwertszeiten deutlicher übereinstimmen. So lassen sich für die Daten der Teilnehmer CEA, SERCO und BNFL direkt die Halbwertszeit von 14,4 Jahren ableiten, wie sie auch in der JEF-2.2 Bibliothek hinterlegt ist. Die Betrachtung der TRITON-Simulationen liefert eine Halbwertszeit von 14,3 Jahren, was auch dem Wert der ENDF-B/VII.0 entspricht. Um die Vergleichbarkeit der Ergebnisse solcher Code-to-Code-Benchmarks weiter zu verbessern, ist es ratsam anzugeben, welche Zerfallsbibliotheken Anwendung finden. So variieren beispielsweise für  $^{151}\text{Sm}$  die in den Datenbanken hinterlegten Halbwertszeiten bereits um 4,9 %. Diese Betrachtung wird durch die Studie "Burn-up Credit Criticality Safety Benchmark - Phase VII" im Bezug auf die



Vorhersage von Aktivitäten in Endlager-relevanten Zeiträumen untersucht (Radulescu u. Wagner, 2012).

Die Simulationsreihe hat gezeigt, dass bei genauer Parametrierung der TRITON-Modelle die Ergebnisse im selben Unsicherheitsband liegen, wie für andere etablierte Reaktorphysikcodes.

Insgesamt bleibt für den synthetischen Code-to-Code-Benchmark festzuhalten, dass sowohl SCALE 6.0 als auch SCALE 6.1 belastbare Ergebnisse liefern, die einem direkten Vergleich mit anderen Reaktorphysikcodes bestehen. Einige Fehlerquellen, wie die numerischen Parameter, wurden besprochen. Die in diesem Abschnitt ermittelten Parameter dienen den nachfolgenden Betrachtungen als Richtwerte.

### 5.1.2 Validierung mittlere Abbrände

Das vorherige Kapitel diente dazu die Rechengenauigkeit von SCALE 6.0 bzw. 6.1 im Vergleich mit anderen Reaktorphysikcodes zu diskutieren und zu beurteilen. Um bei der späteren Begutachtung von realen Abfällen die Nuklidkonzentrationen richtig einzuschätzen, wird anhand eines Vergleichs mit den veröffentlichten Ergebnissen einer Brennstoffstudie an Brennelementen des Kernkraftwerks Obrigheim die Vorhersagefähigkeit von SCALE in Bezug auf mittlere Zielabbrände getestet (Barbero u. a., 1980).

Das Brennelementdesign ist aus heutiger Sicht veraltet und nicht mehr von Relevanz für moderne Anlagen (Nuc, 2004). Jedoch wurden Brennelemente dieser Anlage der Wiederaufarbeitung in La Hague zugeführt. Dadurch sind die Eigenschaften dieser abgebrannten Brennelemente aus Sicht der Produktkontrolle weiterhin von Interesse.

Die Datenbank "Spent Fuel Isotopic Composition Database" (SFCOMPO) wurde ursprünglich vom japanischen Atomenergie Forschungsinstitut (JAERI) betreut (Suyama u. a., 2003). Die aktuelle Version wird von der OECD Nuclear Energy Agency (NEA) verwaltet. Die SFCOMPO stellt die Ergebnisse unterschiedlicher Brennstoffstudien öffentlich zur Verfügung<sup>2</sup>. Die Datenbank umfasst neben den theoretisch und messtechnisch ermittelten Abbränden die Nuklidkonzentrationen unterschiedlicher Schlüsselnuklide sowie deren Verhältnisse.

---

<sup>2</sup>Webseite: <https://www.oecd-neo.org/sfcompo> Juli 2014

Aus diesem Archiv wird der Datensatz für den Obrigheim-Brennstoff mit den Ergebnissen der TRITON-Simulation verglichen. Insgesamt umfasst der Datensatz 23 Messungen an zwei unterschiedlichen Brennelementen und verschiedenen Brennstabpositionen. Es wird der Vergleich für mittlere Abbrände zwischen 30 und 36 [GWd/t<sub>SM</sub>] angewendet. Die Modelle von TRITON beschränken sich auf die Anwendung des zweidimensionalen Codes NEWT (DeHart, 2006). Um mittels der zweidimensionalen Simulationen die Nuklidkonzentrationen an verschiedenen axialen Positionen zu überprüfen, wird jeweils ein Modell für die entsprechende axiale Position parametrisiert und die Leistung entsprechend des Zielabbrands angepasst. Aus der Vielzahl von Messpunkten entlang des Brennstabs E3 werden die Positionen P1, P3 sowie P4 für einen Vergleich herangezogen (Barbero u. a., 1980). Die Brennstoffzusammensetzung an den jeweiligen Positionen wurden sowohl vom damaligen Kernforschungszentrum in Karlsruhe (KFK), heute dem Karlsruher Institut für Technologie (KIT), als auch dem "Joint Research Center" (JRC) der Europäischen Kommission in Ispra untersucht. Abbildung 5.3 zeigt die relative Abweichung der Messungen.

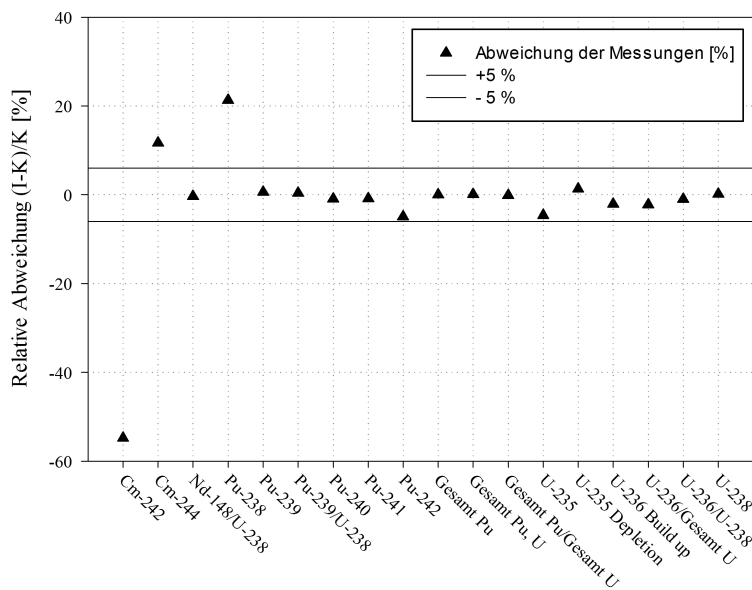


Abbildung 5.3: Vergleich der Messergebnisse beider Laboratorien an ausgewählten Nukliden

Der Hauptteil der Isotope liegt in einem Unsicherheitsband von  $\pm 5\%$ . Jedoch ist eine genauere Betrachtung der Messunsicherheiten nicht möglich, da weder in der SFCOMPO,

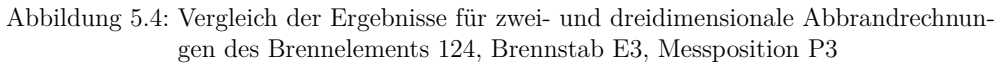
noch im zugehörigen EU-Bericht, hinreichende Angaben zu den Messunsicherheiten aller Nuklide vorgenommen wurden (Barbero u. a., 1980). Aus der Dokumentation geht auch hervor, dass die Actinoiden zu unterschiedlichen Zeitpunkten nach Reaktorentnahme gemessen wurden. Ob eine entsprechende Korrektur der Kühlzeit vorgenommen wurde, ist aus der Dokumentation nicht zu entnehmen.

Der Vergleich der Simulationen mit den beiden Messreihen zeigt, dass der Hauptteil der Nuklide eine Abweichung von  $\pm 15\%$  aufweisen.  $^{241}\text{Am}$  wird jedoch deutlich unterschätzt, die Abweichung liegt bei  $-68\%$ . Auf der anderen Seite ist das Verhältnis von  $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  im Vergleich mit den Daten von JRC und KFK deutlich überschätzt. Dies kann auf eine fehlerhafte Kühlzeitkorrektur hindeuten, da  $^{241}\text{Pu}$  über  $\beta^-$ -Zerfall in das  $^{241}\text{Am}$  übergeht.

Insgesamt zeigt sich, dass die sicherheitsrelevanten Nukliden, wie zum Beispiel  $^{239}\text{Pu}$  oder  $^{235}\text{U}$ , und die Schlüsselnuklide zur Bestimmung des Abbrands hinreichend genau durch die Abbrandrechnung zu ermitteln sind. Da nicht alle Daten der Betriebshistorie offen verfügbar sind, wurden aus der Literatur abgeleitete Standardparameter für die Parametrisierung der Modelle herangezogen. Darunter sind Moderatorordichte, Borsäureanteil, Moderatortemperatur sowie die Brennstofftemperatur (Barbero u. a., 1980). Diese Parameter besitzen einen Einfluss auf die Neutronik des Systems und werden daher im Abschnitt 6.2 im Zusammenhang mit den Korrelationsfunktionen genauer betrachtet.

Die Simulation des Brennelements 124 wurde für die dreidimensionale Abbrandrechnung TRITON/KENO-VI wiederholt. Hierbei zeigt sich, dass die Normierung auf die Gesamtleistung des Brennelements zu einer größeren Variabilität führt, als im Fall der zweidimensionalen Simulationen. Bei der Simulation von 2D-Modellen wird die Leistung auf die betrachtete Brennstabposition angepasst. Für die 3D-Simulation hingegen wird die Leistung auf das gesamte Brennelement bezogen. TRITON errechnet aus den ermittelten Neutronenflüssen und Schwermetallanteilen die spezifische Leistung für jede Materialzone. Im Fall der 3D-Simulation führte dies zu einer Überschätzung des Abbrands in der Position P3 des Pins E3. Dies wurde durch eine Anpassung der spezifischen Leistung korrigiert. Die Ergebnisse der 3D-Simulation für die Position P3 sind in Abbildung 5.4 dargestellt.

Die Ergebnisse der beiden Modelle sind nicht direkt vergleichbar, da die Messergebnisse ohne Angaben von Unsicherheitsgrenzen in der SFCOMPO-Datenbank hinterlegt sind. Es kann zumindest abgeleitet werden, dass sowohl bei zwei- als auch den dreidimensionalen Berechnungen die Nuklidzusammensetzungen in der richtigen Größenordnung liegen.



### 5.1.3 Validierung Hochabbbrand

Die internationalen Forschungsprogramme REBUS und ARIANE dienen zur direkten Validierung von Reaktorphysikcodes, die für die Kritikalitätsrechnungen angewendet werden. Die Forschungsprogramme liefen bis Ende 2005 (Belgonucleaire, 2002). Mithilfe des Prüfreaktors VENUS am Forschungszentrum SCK/CEN wurde die Kritikalität zweier hoch-abgebrannter Brennelemente untersucht. Die Elemente stammen aus dem Schwei-

Tabelle 5.3: Brennelementdaten (Belgonucleaire, 2002)

| Parameter            | Daten                     |
|----------------------|---------------------------|
| Brennelementlayout   | 18x18-24                  |
| Brennstababstand     | 1,27 [cm]                 |
| Brennelementabstand  | 23,116 [cm]               |
| Pelletdurchmesser    | 0,805 [cm]                |
| Brennstabdurchmesser | 0,95 [cm]                 |
| Brennstoff           | UO <sub>2</sub>           |
| Anreicherung         | 3,8 [Gew.-% U-235]        |
| Brennstoffdichte     | 10,4 [g/cm <sup>3</sup> ] |
| Hüllrohrmaterial     | Zircaloy-4                |

zer Gösgen-Reaktor und dem Gemeinschaftskraftwerk Neckarwestheim-II (GKN-II). Zusätzlich zur Kritikalität wurde das Brennstoffinventar durch zerstörende Messtechniken ermittelt. Das vorliegende Nuklidspektrum dient in diesem Fall als Vergleichsbasis für die Modellierung der Abbrandrechnung.

Wie in den Abschnitten zuvor werden diese Simulationen jeweils mit beiden SCALE-Versionen durchgeführt. Die Brennstoffstudie wurde vom "Oak Ridge National Laboratory" (ORNL) im Auftrag der amerikanischen "Nuclear Regulatory Commission" (NRC) ebenfalls untersucht. In dieser Studie wird der selbe Reaktorphysikcode SCALE, jedoch mit unterschiedlichen Wirkungsquerschnittsdatenbanken, verwendet. Somit kann neben den gemessenen Inventar, auch ein Code-to-Code-Vergleich vorgenommen werden. Tabelle 5.3 fasst die wichtigsten Geometrieparameter zusammen. Das Design eines GKN-II-Brennelements entspricht einem rechtwinkligen Gitter mit 18 x 18-Stabpositionen. Da 24 dieser Positionen durch Führungsrohre für Steuer- oder Instrumentierungsstäbe ersetzt sind, umfasst ein Brennelement 300 einzelne Brennstäbe. Zwölf der Brennstäbe beinhalten eine Gadolinium-Uran-Matrix. Die Gadolinium-Isotope <sup>155</sup>Gd und <sup>157</sup>Gd sind starke Neutronenabsorber. Solche Giftstäbe werden für die Reduzierung der Überschussreaktivität eingesetzt und bewirken, dass dem Moderator weniger Borsäure zugefügt werden muss. Die untersuchte Probe umfasst drei Brennstoffpellets aus dem mittleren Bereich des Brennelements. Der gemessene Zielabbrand liegt bei 54 [GWd/t<sub>SM</sub>]. Sowohl die Messunsicherheiten als auch die Messzeitpunkte nach Ende der Standzeit sind ebenfalls in der Dokumentation des REBUS-Experiments veröffentlicht (Belgonucleaire, 2002), wodurch ein direkter Vergleich zwischen

Abbrandrechnungen und den gemessenen Nuklidvektoren unter Berücksichtigung der Unsicherheit möglich ist.

Die Temperaturverteilung und Moderatorordichte werden zeitabhängig für die gesamte Standzeit modelliert. Die Parameter beziehen sich auf einen Betriebsdruck von 158 bar. Die Borsäurekonzentration wird ebenfalls als zeitabhängiger Parameter berücksichtigt. Abbildung 5.5 zeigt die Reaktorparameter. Das geometrische Layout des simulierten Brennelements

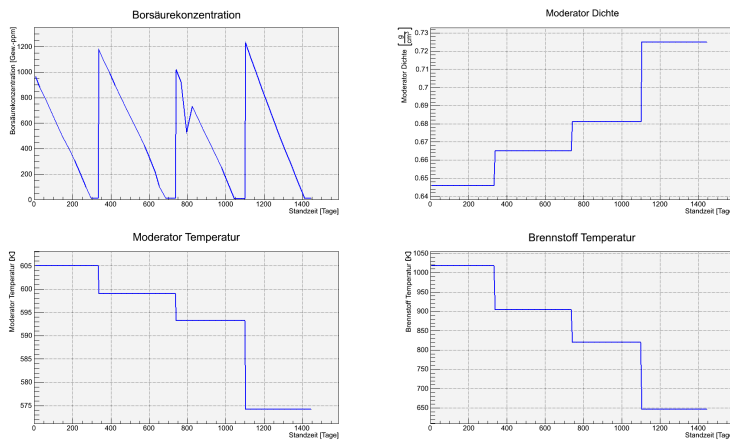


Abbildung 5.5: Verlauf der gewählten Reaktorparameter für die SCALE-Simulationen

ments ist in Abbildung 5.6 dargestellt.

Aufgrund der asymmetrischen Anordnung der Gadoliniumsstäbe wird das Brennelement nicht als ein Viertel-Element mit reflektierenden Randbedingungen, sondern als gesamtes Element simuliert. Das Modell ist ausgelegt für die zweidimensionale "t-depl"-Kontrollroutinen von TRITON. Es entspricht einem zweidimensionalen Schnitt durch das Brennelement in der Höhe der Messposition. Um die Neutronenflussverteilung innerhalb der Probe möglichst exakt abzubilden und gleichzeitig eine möglichst kurze Rechenzeit zu gewährleisten, wird sowohl die Probe als auch die acht nächsten Brennstäbe durch separate Materialzusammensetzung modelliert. Die übrigen Urandioxidbrennstäbe werden hingegen in eine Brennstoffzone zusammengefasst.

Die Gesamtleistung des Systems wird, wie auch im vorherigen Abschnitt, auf den Zielabbrand der Probe normiert. Insgesamt werden 14 Abbrandrechnungen unter Variation der numerischen Parameter der Abbrandsequenz betrachtet. Die Einflüsse der unterschiedli-

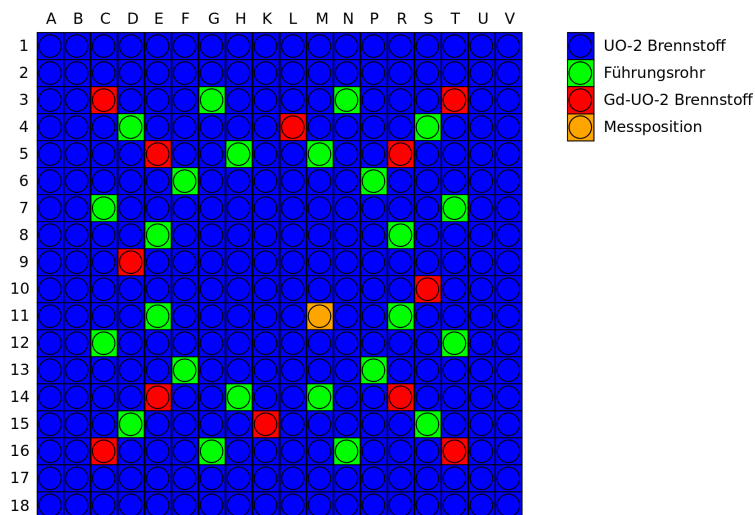


Abbildung 5.6: Layout des GKN-II Brennelements

chen Reaktorparameter werden in Abschnitt 6.2 besprochen. Die geometrischen und reaktorphysikalischen Parameter wurden für alle Simulationen als konstant angenommen. Dadurch besitzt ausschließlich die Variation der numerischen Parameter einen Einfluss auf die Unterschiede der Zusammensetzung des abgebrannten Brennstoffs. Die angewendeten Parameter sind in Tabelle 5.4 zusammengestellt.

Die Parameter CENTRM, 2REGION und NITAWL beziehen sich auf die Erzeugung der problemabhängigen Wechselwirkungsquerschnitte, deren Funktionsweisen in Abschnitt 3.2.1 dargestellt sind. An dieser Stelle sei nochmals darauf hingewiesen, dass durch Selbstabschirmung im epithermischen Bereich des Neutronenspektrums die Gruppenwechselwirkungsquerschnitte von der Geometrie des Brennstoffs abhängig sind und daher eine der drei Methoden zur Anwendung kommt, um die problemunabhängigen Wechselwirkungsquerschnitte aus den Datenbanken an das vorliegende Problem anzupassen. Die aus diesen Programmmodulen entstammenden Wechselwirkungsquerschnitte werden von dem Transportcode NEWT weiterverwendet. SCALE 6.0 sowie 6.1 beinhalten mehrere Wechselwirkungsdatenbanken. So kann zwischen der ENDF-B/V, ENDF-B/VI sowie der neusten Evaluierung der ENDF-B/VII.0 ausgewählt werden. Die ENDF-B/V liegt zudem entweder mit 44 oder 238 Energiegruppen vor. Die übrigen neueren Datenbanken sind ausschließlich mit der feinen Aufteilung in 238 Energiegruppen hinterlegt. Der Nutzer kann jedoch über die

Tabelle 5.4: Numerische Simulationsparameter des GKN-Benchmarks

| Simulation  | NITAWL | CENTRM | 2REGION | XS-Bibliothek | Addnux | Randbedingung | Bemerkung  |
|-------------|--------|--------|---------|---------------|--------|---------------|--|
| GKN-II_001  | x      |        |         | V5-44         | 2      | Mirror        | Basisfall  |
| GKN-II_002  | x      |        |         | V5-44         | 2      | White         |  |
| GKN-II_003  | x      |        |         | V5-44         | 2      | Periodic      |  |
| GKN-II_004  | x      |        |         | V5-238        | 2      | Mirror        |  |
| GKN-II_005  |        | x      |         | V5-44         | 2      | Mirror        | Mod. Geometrie<br>Zusätzliche Zeitschritte<br>Konst. Temperatur<br>Konst. Moderatorichte<br>Zeitunabhängig |
| GKN-II_006  |        | x      |         | V5-238        | 2      | Mirror        |  |
| GKN-II_007  |        | x      |         | V6-238        | 2      | Mirror        |  |
| GKN-II_008  |        | x      |         | V7-238        | 2      | Mirror        |  |
| GKN-II_009  |        | x      |         | V7-238        | 3      | Mirror        |  |
| GKN-II_010  |        |        | x       | V5-238        | 2      | Mirror        |  |
| GKN-II_011  |        |        | x       | V6-238        | 2      | Mirror        |  |
| GKN-II_012  |        |        | x       | V7-238        | 2      | Mirror        |  |
| GKN-II_013  |        | x      |         | V7-238        | 3      | White         |  |
| GKN-II_014  |        | x      |         | V7-238        | 3      | White         |  |
| GKN-II_temp |        | x      |         | V7-238        | 3      | White         |  |
| GKN-II_rho  |        | x      |         | V7-238        | 3      | White         |  |
| GKN-II_both |        | x      |         | V7-238        | 3      | White         |  |



TRITON-Kontrollroutine die fein aufgelösten Wechselwirkungsquerschnitte zu größeren Energiegruppen zusammenfassen, um Rechenzeit zu sparen. Die Nomenklatur V5-44 entspricht einer ENDF-B/V Datenbank mit 44 Energiegruppen.

ADDNUX ist ein globaler Steuerungsparameter von TRITON. Er bewirkt, dass vor Beginn der Rechnungen dem Brennstoff relevante Spurenelemente hinzugefügt werden. Im Regelfall (ADDNUX=2) sind es 50 kritikalitäts-relevante Nuklide mit einer Konzentration von  $1\text{E-}20$  [atoms/barn.cm]. Dies ist erforderlich um alle Nuklide, die die Gruppenwechselwirkungsquerschnitte über die Standzeit hinweg dominieren, zum Beispiel Neutronengifte, gleich zu Beginn durch ORIGEN-S verarbeiten. Ein weiterer wichtiger Parameter ist die Wahl der Randbedingungen des Systems. Im Fall von SCALE wird entweder ein zweidimensionales oder ein dreidimensionales Modell des Brennelements verwendet. Um den Fall eines unendlich ausgedehnten Reaktors darzustellen, werden die Begrenzungsflächen des Modells mit reflektierenden Randbedingungen belegt. Hierbei sind vier Bedingungen von besonderem Interesse. Im Fall von gespiegelten Oberflächen (MIRROR) entspricht der einfallende, winkelabhängige Neutronenfluss gerade dem austretenden Neutronenfluss an dieser Grenzfläche unter Totalreflektion.

Der Modus WHITE bezieht sich darauf, dass der winkelabhängige Neutronenfluss nicht gerichtet zurückgeworfen wird, wie im Fall von MIRROR, sondern isotrop gestreut. Der dritte Modus (PERIODIC) bestimmt beim Durchtritt durch eine begrenzende Fläche den Winkel sowie die Position und koppelt diesen Anteil des Neutronenflusses auf der gegenüberliegenden Begrenzungsfläche wieder in das System ein. Jedoch ist dieses Verfahren nur dann gültig, wenn eine Spiegelsymmetrie im Layout des Brennelements vorliegt. Üblicherweise werden die Methoden MIRROR oder WHITE zur Beschreibung der Randbedingungen verwendet.

Der vierte Modus (VACUUM) stellt einen Verlustterm dar. Neutronenhistorien oder Neutronenflüsse, die Oberflächen mit diesem Modus durchschreiten, werden abgebrochen. Dies simuliert das Verhalten eines perfekten Absorbers. Im Fall von axialen Abbrandrechnungen sind die axialen Begrenzungsflächen mit VACCUM belegt, während die transversalen Begrenzungsflächen entweder mit MIRROR oder WHITE belegt sind.

Für ein zweidimensionales Modell entspricht dies einem unendlich ausgedehnten Reaktor oder - mit anderen Worten - werden die Verlustterme der Sechsfaktorengleichung nicht berücksichtigt (Lamarsh u. Baratta, 2001). Im dreidimensionalen Fall ist das System in der

transversalen Richtung unendlich ausgedehnt, wohingegen das System in axialer Richtung begrenzt ist. Somit sind nur Verluste durch die axiale Begrenzungsschichten von Bedeutung. Die aus solchen Modellen errechneten Kritikalitätswerte entsprechend nicht dem Zustand in einem realen Reaktor, sondern eher in einem unendlich ausgedehnten System.

Zu den 14 Variationsrechnungen kommen nochmals drei Simulationen hinzu, um den Effekt der sekundären Reaktorparameter abzuschätzen. Hierzu wurde in drei Schritten die zeitabhängige Modellierung von Temperatur, Dichte sowie Borsäureanteil durch entsprechende zeitlich konstante Mittelwerte ersetzt.

Der Basisfall der Untersuchungsreihe ist die Simulation mit NITAWL als Wechselwirkungsprozessor und einer ENDF-B/V Bibliothek mit 44 Energiegruppen. Diese Festlegung erlaubt den direkten Vergleich mit den Ergebnissen der ORNL-Studie. Zu erwarten ist, dass dieselben Reaktorphysikcodes, jedoch ausgeführt auf unterschiedlichen Systemen und unterschiedlichen Datenbanken, weiterhin ähnliche Ergebnisse liefern müssen. Die Abbildung 5.7 stellt die relativen Abweichungen zwischen der ORNL-Studie und dem TRITON-Simulationen dar.

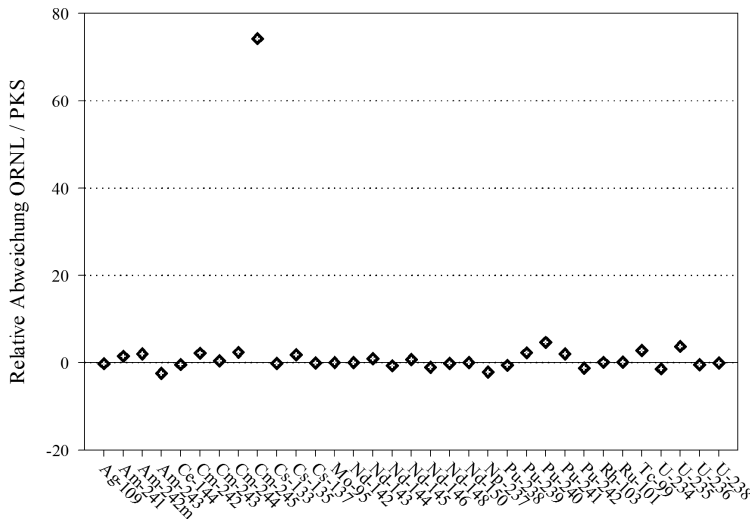


Abbildung 5.7: Vergleich der Oak-Ridge Studie mit dem Simulationsergebnis des Basisfalls

Die Abweichungen zwischen den beiden Simulationen liegen im Bereich von  $\pm 4\%$ . Dies war zu erwarten, jedoch zeigt das Isotop  $^{245}\text{Cm}$  beim direkten Vergleich eine Abweichung

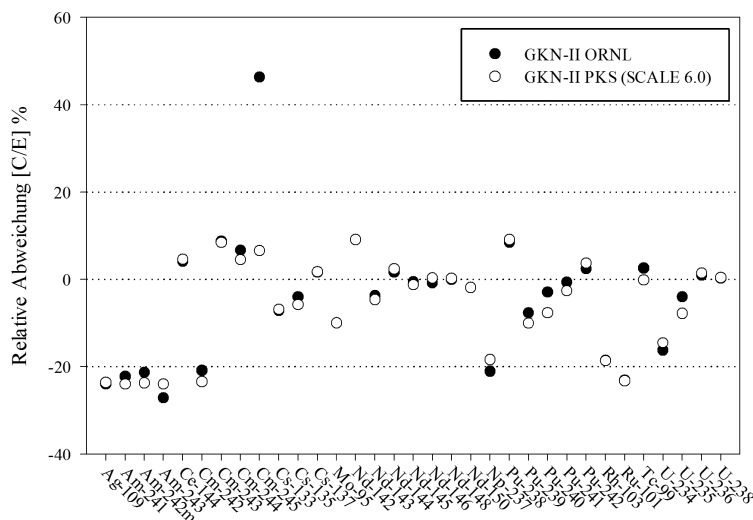


Abbildung 5.8: Vergleich der Oak-Rigde Studie mit der Messung

Durch den Vergleich der simulierten und gemessenen Nuklidkonzentrationen werden die Parameter abgeleitet, die in zukünftigen Abbrandrechnungen als Standardwerte angenommen werden.

Um einen Vergleich zwischen den gemessenen Werten und den errechneten Nuklidkonzentrationen vorzunehmen, wird die Kühlzeit entsprechend der Dokumentation der Brennstoffstudie berücksichtigt. Die größte Abweichung im Vergleich mit den gemessenen Werten entfällt auf die Palladiumisotope  $^{105}\text{Pd}$  und  $^{108}\text{Pd}$ , die in allen Simulationen eine Abweichung zwischen 56 % und 65 % aufweisen, unabhängig von den gewählten Simulationsparametern. Jedoch sind diese Isotope stabil und deren Neutroneneinfangquerschnitte sind nicht maßgeblich für die Bestimmung der Kritikalitätssicherheit. Für die Diskrepanz zwischen Simulation und den dokumentierten Messergebnissen konnte keine zufriedenstellende Erklärung gefunden werden. Es zeigte sich jedoch, dass bei Anwendung der neusten Wechselwirkungsbibliotheken die Abweichung geringer ist als bei den Simulationen mit Daten aus

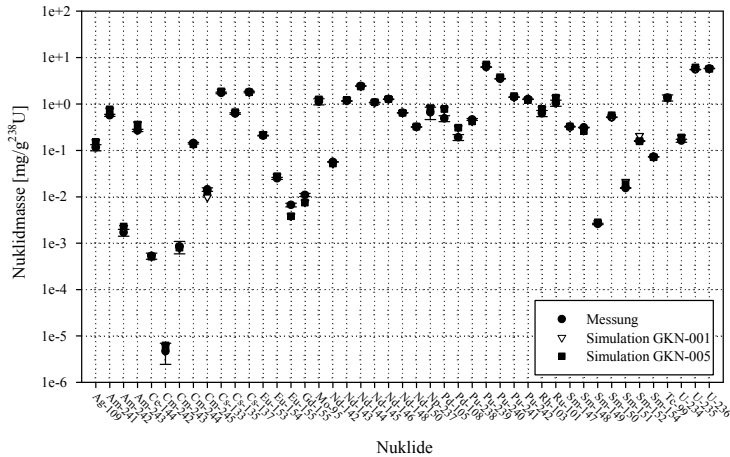


Abbildung 5.9: Ergebnisse der GKN-II Variationsrechnungen

der ENDF/B-V-Bibliothek. Die Abweichungen der übrigen Werte lagen zwischen +30 % und -20 % bezogen auf den Mittelwert der gemessenen Werte. Größere Abweichungen finden sich bei den Actinoiden und den Lanthanoiden. Ein Wechsel von ENDF/B-V auf ENDF/B-VII-Bibliotheken wirkt sich positiv auf die Berechnung der Lanthanoide aus. Nach Wechsel der Datenbank und der Wechselwirkungsprozessierung von NITAWL auf CENTRUM, liegen die errechneten Nuklidkonzentrationen der Samariumisotope innerhalb der 3-Sigma Unsicherheit der Messungen.

Die Hälfte der ermittelten Nuklidkonzentrationen liegen innerhalb der Unsicherheit der Messungen. Der Vergleich zwischen den drei unterschiedlichen Randbedingungen, MIRROR, WHITE und PERIODIC, zeigt, dass sowohl WHITE als auch MIRROR vergleichbare Ergebnisse liefern, wohingegen PERIODIC von allen durchgeführten Simulationen die höchsten Abweichungen aufweist. Dies wird auf den asymmetrischen Aufbau des Brennelements zurückgeführt.

Wie bereits angedeutet, bewirkt die Wechselwirkungsprozessierung einen deutlichen Unterschied für einige der untersuchten Nuklide. Der Unterschied zwischen CENTRUM und 2REGION ist jedoch marginal. Einzig bei der Betrachtung der Ergebnisse ENDF/B-V zeigen sich deutliche Diskrepanzen in den Lanthanoiden. Da sowohl CENTRUM als auch 2REGION für die Verarbeitung von neueren Evaluierungen der Neutronendatenbanken ausgelegt sind, spielt dieses Ergebnis für die weitere Betrachtung eine untergeordnete Rolle.

le.

Aufbauend auf den erzielten Ergebnissen des Benchmarks wurden kleinere Korrekturen an den Modellen vorgenommen. So wurde die Geometrie geringfügig modifiziert, da bei der Konvertierung zwischen Zoll und Zentimeter gerundete Werte vorlagen. Die Ergebnisse zeigen jedoch keine maßgeblichen Änderungen der Nuklidverhältnisse. Des Weiteren wurde die modifizierte Geometrie mit zusätzlichen Zeitschritten simuliert. Die Anzahl der Zeitschritte wurde gegenüber des Basisfalls vervierfacht. Das Samariumisotop  $^{149}\text{Sm}$  besitzt einen thermischen Einfangquerschnitt von 40.100 barn und ist somit ein wichtiges Nuklid bei der Bestimmung der Kritikalitätssicherheit. Die Abweichung zwischen den beiden Fällen betrug 2,3 %. Die feinere zeitliche Aufteilung bewirkt eine genauere Bestimmung der Nuklidkonzentration, da der Einfluss des hohen Wechselwirkungsquerschnitts besser erfasst wird.

Der ADDNUX-Parameter steuert die Zugabe von Spurenelementen zur Materialdefinition des Brennstoffs, es zeigte sich jedoch, dass für die Berechnung der Konzentration der 45 gemessenen Nuklide, dieser Faktor praktisch keine Rolle spielt.

Die bisher besprochenen Simulationen wurden mit zeitlich variablen Reaktorparametern parametrisiert. Das Verhalten der Brennstoff- und Moderatortemperatur, Moderatordichte sowie der Borsäurekonzentration wird entsprechend der in Abbildung 5.5 dargestellten zeitlichen Verläufe simuliert. Um den Aufbau und die Parametrisierung der Simulationen zu vereinfachen, wird schrittweise die zeitabhängige Modellierung der Parameter durch die zeitlichen Mittelwerte ersetzt. Es zeigt sich, dass vor allem die zeitabhängige Modellierung der Moderatordichte bessere Ergebnisse liefert, als ein zeitlich konstanter Ansatz. Insgesamt lässt sich für diese Simulationsreihe jedoch festhalten, dass in Bezug auf die gemessenen Nuklidkonzentrationen die konstante oder variable Parametrisierung keine Rolle spielt, da sich die Abweichungen zwischen Simulation und Messung kaum ändern. Vergleicht man die Nuklidkonzentrationen zwischen den SCALE-Versionen 6.0 und 6.1, ist ersichtlich, dass die Ergebnisse von SCALE 6.1 zu mehr Nukliden führen, die in den 3-Sigma Unsicherheiten der Messungen liegen, die Abweichungen der Palladiumnuklide tritt jedoch auch bei SCALE 6.1 auf.

Insgesamt lässt sich festhalten, dass die Ergebnisqualität sowohl von SCALE 6.1 als auch 6.0 sehr gut mit den gemessenen Nuklidkonzentrationen übereinstimmt. Somit konnte die SCALE-Software auch für den Hochabbbrand verifiziert werden. Diese Simulationsreihe liefert Aufschluss über die notwendigen numerischen Standardparameter, die für die Abbrandrechnung angewendet werden sollen. Die Standardwerte für die folgenden Analysen

wurden wie folgt festgelegt:

- SCALE Version : 6.1
- Randbedingung : MIRROR
- Wechselwirkungsbibliothek : ENDF/B-VII
- ADDNUX-Parameter : 3
- Wechselwirkungsprozessor : CENTRM

## 5.2 Validierung des Teilchentransports

Neben der Abbrandrechnung ist die Simulation des Teilchentransports durch eine Abfallmatrix von entscheidender Bedeutung bei der Ermittlung der Produkteigenschaften. Für die Simulation des Teilchentransports werden die im Abschnitt 3.2.3 beschriebenen Softwareprodukte MCNP5 und MCNP/X angewendet.

Um die Genauigkeit dieser Codes in Verbindung mit dem Kopplungssystem zu untersuchen, werden hochaktive Glaskokillen aus der Wiederaufarbeitungsanlage in Karlsruhe (WAK) simuliert. Die Garantieparameter für hochaktive Glaskokillen sind in Tabelle 5.5 zusammengefasst. Aus den deklarierten Nuklidaktivitäten wird eine SCALE-kompatible Binärdatei automatisiert erzeugt, welche die deklarierten Aktivitäten und die Glaszusammensetzung enthält. Die Dokumentation der VEK-Kokillen beinhaltet ebenfalls die deklarierte thermische Leistung sowie die Gamma- und Neutronendosisleistung.

MCNP eignet sich für die Berechnung der Dosisleistung in Abhängigkeit der Quellstärke und der Materialzusammensetzung der Abfallmatrix. Die erzeugten SCALE-Binärdateien, nachfolgend als FT71-Dateien bezeichnet, werden in das Kopplungsprogramm eingelesen. Das gesamte System zur generischen Simulation von Abfällen aus der Wiederaufarbeitung umfasst alle Prozessschritte. Bei diesem Test werden nur die Zwischenlagerungsroutine und Konditionierungsroutine angesprochen, da der PUREX-Prozess bereits abgeschlossen ist. Die daraus erzeugten MCNP-Modelle werden für jedes Abfallgebinde simuliert und die resultierenden Dosisleistungen, bezogen auf Kontakt und in einem Meter Abstand zum Gebinde, mit den deklarierten Werten verglichen. Eine genauere Beschreibung der Kondi-

tionierungsroutine findet sich in Abschnitt 3.6.

Für die Neutronen-Dosisleistung sind zwei Quellterme von Bedeutung. Zum einen entstehen Neutronen aus der spontanen Spaltung einiger Actinoide, wie beispielsweise dem  $^{244}\text{Cm}$ , zum anderen durch  $(\alpha, n)$ -Reaktionen von  $\alpha$ -Teilchen in der Glasmatrix. Beide Anteile lassen sich durch ORIGEN-S bestimmen.

Ursprünglich sollte das Programm SOURCES-4C für die Berechnung Anwendung finden, jedoch wurde die Funktionalität des Programms seit SCALE 5.0 in ORIGEN-S vollständig integriert (Gauld u. a., 2002). Die Methodik der Konditionierungsroutine sieht vor, dass aus allen erzeugten Nukliddaten die Matrixzusammensetzung ausgelesen und mit der vordefinierten generischen MCNP-Simulationsvorlage ein gebindespezifisches Modell erzeugt wird. Das Ergebnis dieser Routine sind neue MCNP-Modelle, die sowohl die spezifischen Nuklidvektoren, als auch die Neutronenquellstärke und das zugehörige Neutronenspektrum beinhalten.

Typischerweise liegt die Quellstärke für ein beladenes Glasprodukt in der Größenordnung von  $1 \cdot 10^9$  [n/s]. Dieser Wert ist bezogen auf die garantierte  $\alpha$ -Aktivität von  $8,6 \cdot 10^{13}$  [Bq], vgl. (Lüdeke u. Odoj, 2004). Ein MCNP-Oberflächendetektor sowie mehrere Flussdetektoren sind im Abstand von 1 [cm] bzw. 100 [cm] von der Oberfläche des Gebildes positioniert. Um eine hinreichende Statistik in den Detektoren zu erreichen, werden pro Simulation  $10^9$  Teilchen berechnet. Die Ergebnisse der Detektoren entsprechen, ohne Normierung auf die Quellstärke, dem Neutronenfluss bezogen auf ein Startneutron. Als Normierungsfaktoren kommen die Quellstärke für jedes Gebinde und die Umrechnungsfaktoren zwischen Neutronenfluss und der Umgebungsdosisleistung  $H^*(10)$  hinzu. Die Umgebungsdosisleistung wird angegeben in Milligray pro Stunde. Für die Normierung ergeben sich für die MCNP Detektoren:

$$\left[ \frac{1}{\text{cm}^2} \right] \left[ \frac{n}{s} \right] \left[ \frac{\text{mGy} \cdot \text{cm}^2 \cdot s}{n \cdot h} \right] \quad (5.1)$$

Die Konversionsfaktoren für  $H^*(10)$  entstammen der ICRP-Richtlinie 74 (ICRP, 1997). Um etwaige Fehler in der Vorverarbeitung und Kopplung der Daten aufzudecken, wird die Verarbeitung jeweils für SCALE 6.0 sowie für 6.1 wiederholt. Abbildung 5.10 zeigt den geometrischen Aufbau der MCNP-Modelle. Die zu erwarteten Unterschiede zwischen SCALE 6.0 sowie 6.1 beziehen sich ausschließlich auf die Änderungen der Zerfallsdatenbank. Wie bereits erwähnt, basiert die Zerfallsbibliothek von SCALE 6.0 auf der ENDF-B/VI.8-Datenbank, wohingegen SCALE 6.1 die neuere Version der ENDF-B/VII.0 Zerfallsbibliothek einsetzt. Aus den beiden Läufen wurden mittels linearer Regression die Änderungen ermittelt. Der Regressionskoeffizient  $R^2$  entspricht 0,9997, was darauf hindeutet, dass be-

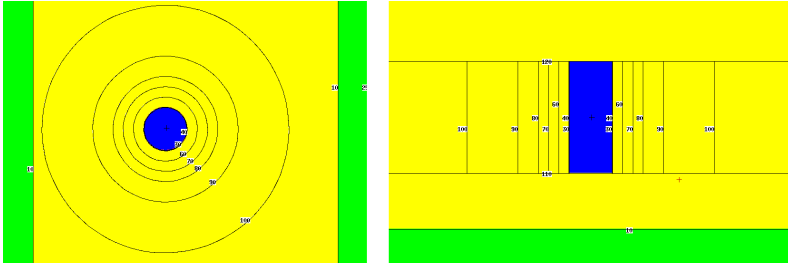


Abbildung 5.10: Geometrie der MCNP-Simulation der VEK-Gebinde, Links: (x-y)-Ebene, Rechts: (y-z)-Ebene

zätzlich der ermittelten Quellstärken und den daraus abgeleiteten Dosisleistungen zwischen beiden Programmversionen keine maßgeblichen Unterschiede vorliegen. Um sowohl die deklarierten Werte, als auch die berechneten Werte in den Kontext der Produktkontrolle zu stellen, werden diese mit den geforderten Garantieparametern verglichen, die in Tabelle 5.5 hinterlegt sind.

Für die Berechnung der Neutronen-Dosisleistung müssen zwei Fehlerquellen berücksichtigt werden. Zum einen sind die Ergebnisse der Monte-Carlo-Methoden stets statistischen Unsicherheiten unterworfen, zum anderen liefert die nicht näher spezifizierte  $\alpha$ -Aktivität einen Beitrag zu der aus  $(\alpha,n)$ -Reaktionen stammenden Neutronenquellstärke. Daher werden mehrere Szenarien betrachtet und daraus das mittlere Verhalten abgeleitet. Im ersten Fall werden nur  $(\alpha,n)$ -Neutronen betrachtet, die aus den deklarierten Schlüsselnuklidaktivitäten entstammen. In zwei weiteren Szenarien werden zusätzlich die  $\alpha$ -emittierenden Nuklide der Uran- bzw. Plutoniumszerfallsreihen mit in die Rechnung aufgenommen.

Abbildung 5.11 zeigt den Vergleich zwischen deklariertem und berechneter Neutronen-Dosisleistung auf Kontakt. Das Fehlerband entspricht zwei Standardabweichungen. Es zeigt sich eine geringe Variabilität des Hauptproduktionsbereich für den Vergleich zwischen den einzelnen Gebinden. Die Variation liegt bei 5,7 %. Die 2-Sigma-Unsicherheit deckt für die Hauptproduktion alle deklarierten Werte ab. Einzig im Bereich der An- und Abfahrkokillen stellen sich Abweichungen ein, die außerhalb der Unsicherheit liegen, da die deklarierten Werte jedoch ohne Angabe einer Messunsicherheit dokumentiert sind, ist nicht nachprüfbar, ob diese Abweichungen auch durch schlechte Zählstatistiken erklärbar wären. Stellt man sowohl die errechnete als auch deklarierte Dosisleistung gegeneinander auf, so lässt sich aus der Steigung der Kurve ableiten, ob die Simulation die Dosisleistung eher über- oder



Tabelle 5.5: Garantieparameter der VEK-Glasgebinde, vgl. (Lüdeke u. Odoj, 2004)

| Garantierte Parameter                                |           | Garantiewert               |
|--|-----------|----------------------------|
| Kalzinatbeladung                                     | $\leq$    | 19,0 Gew.-%                |
| Gebindemasse   | $\leq$    | 550,0 kg/Kokille           |
| Kokillenabmaße bei Raumtemperatur                    |           |                            |
| - Durchmesser Kokille aussen                         | $\approx$ | 430,0 mm                   |
| - Wandstärke Kokille                                 | $=$       | 5,0 mm                     |
| - Gesamthöhe Kokille (ohne Deckel)                   | $\approx$ | 1335,0 mm                  |
| Schulterwinkel Kokille                               | $=$       | 35,0 °                     |
| Durchmesser Befüllöffnung innen                      | $\approx$ | 140,0 mm                   |
| Durchmesser Flanschkragen aussen                     | $\approx$ | 220,0 mm                   |
| Deckelabmaße bei Raumtemperatur                      |           |                            |
| - Durchmesser Deckel aussen                          | $\approx$ | 200,0 mm                   |
| - Wandstärke Deckel (Aussenrand/Innenbereich)        | $=$       | 3,0/5,0 mm                 |
| Stapelhöhe bei Lagertemperatur                       | $=$       | 1.275,0 mm/Kokille + 72 mm |
| Zulässige nichtfesthaftende Oberflächenkontamination |           |                            |
| - $\alpha$ -Strahler                                 | $\leq$    | 0,4 Bq/cm <sup>2</sup>     |
| - $\beta/\gamma$ -Strahler                           | $\leq$    | 4,0 Bq/cm <sup>2</sup>     |
| Aktivität <sup>90</sup> Sr + Y                       | $\leq$    | 4,5E+15 Bq/Kokille         |
| Aktivität <sup>137</sup> Cs+ <sup>137m</sup> Ba      | $\leq$    | 5,1E+15 Bq/Kokille         |
| Gesamt $\alpha$ -Aktivität                           | $\leq$    | 8,6E+13 Bq/Kokille         |
| Gesamt $\beta/\gamma$ -Aktivität                     | $\leq$    | 9,6E+15 Bq/Kokille         |
| Gesamtmasse Uran                                     | $\leq$    | 7.200,0 g/Kokille          |
| Gesamtmasse Plutonium                                | $\leq$    | 190,0 g/Kokille            |
| Gesamtmasse Curium                                   | $\leq$    | 25,0 g/Kokille             |
| Dosisleistung:                                       |           |                            |
| - $\beta, \gamma$ an der Oberfläche                  | $\leq$    | 440,0 Gy/h                 |
| - $\beta, \gamma$ in 1 m Abstand zur Oberfläche      | $\leq$    | 35,0 Gy/h                  |
| - n (Neutronen) an der Oberfläche                    | $\leq$    | 2,0E-3 Gy/h                |
| - n in 1 m Abstand zur Oberfläche                    | $\leq$    | 3,0E-4 Gy/h                |
| Wärmeleistung der Kokille                            | $\leq$    | 734,0 W/Kokille            |

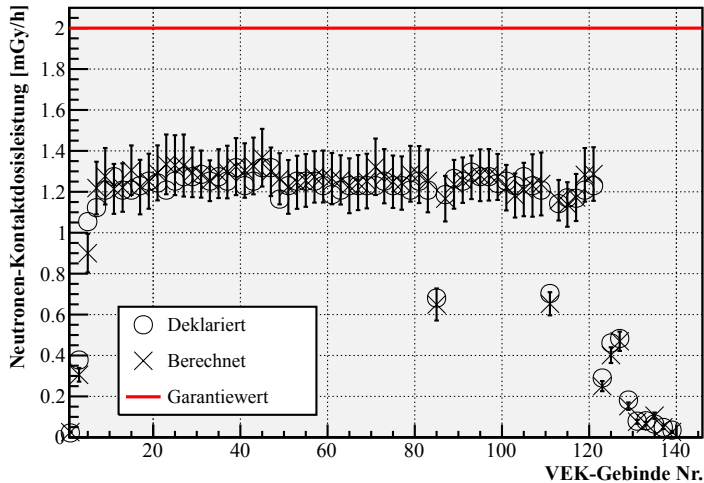


Abbildung 5.11: Vergleich zwischen der deklarierten und berechneten Neutronendosisleistung der VEK-Gebinde

unterschätzt. Die Steigung der linearen Regression beträgt 0,9976, was darauf hindeutet, dass die Berechnungen tendenziell dazu neigen, die Dosisleistung etwas zu unterschätzen. Die ermittelte Steigung ist jedoch auch der statistischen Unsicherheit unterworfen. Insgesamt lässt sich am Beispiel der VEK-Glaskokillen demonstrieren, dass das Kopplungssystem in Kombination mit MCNP eingesetzt werden kann, um Produkteigenschaften für die Qualitätskontrolle von radioaktiven Abfallgebinden unabhängig abzuleiten. Der Aufbau des Kopplungssystems ermöglicht, auf Basis der deklarierten Nuklidaktivitäten, eine Einschätzung der Radiotoxizität der VEK-Glasgebinde zu berechnen. Die ermittelten Radiotoxizitäten der Abfallgebinde dienen im weiteren Verlauf dieser Arbeit als Referenzwerte, für den Vergleich mit den Produkteigenschaften eines weiteren Abfallstroms aus der Wiederaufarbeitung. Das Konzept der Berechnung ist identisch mit dem Vorgehen dargestellt in Abschnitt 3.4.3. Aus der Gebindebegleitdokumentation aller 140 VEK-Abfallgebinde wurde die Radiotoxizität für einen Zeitraum von einer Millionen Jahren berechnet. Die Darstellung in Abbildung 5.13 umfasst zehn Abfallgebinde der gesamten Kampagne. Über den gesamten Zeitraum des Betriebs der Wiederaufarbeitungsanlage in Karlsruhe wurden zirka 200 t Schwermetall verarbeitet. Pro produzierte VEK-Glaskokille entspricht dies einem Schwermetalläquivalent von 1,43 t. Die Radiotoxizitäten der Gebinde werden in Relation zu

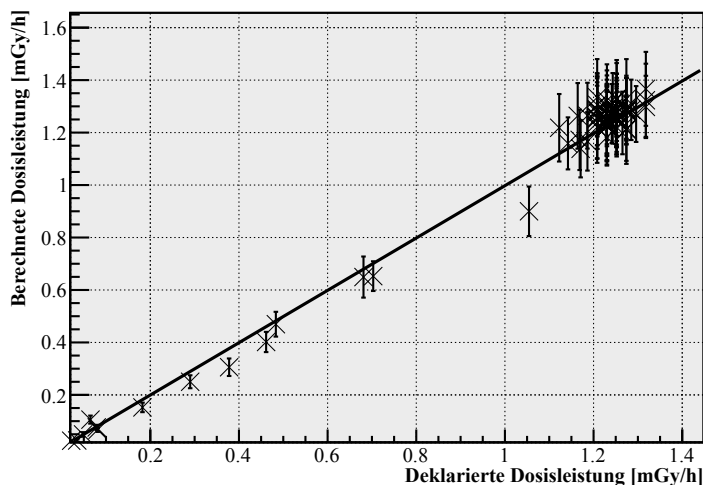


Abbildung 5.12: Korrelation zwischen der deklarierten und berechneten Neutronendosisleistung der VEK-Gebinde

dem Gefährdungspotential von 1,43 t frischem  $\text{UO}_2$ -Brennstoff sowie Brennstoff im Gleichgewicht mit den Tochternukliden der Zerfallsketten gesetzt. Es zeigt sich, dass auf Grund der homogenen Mischung der Abfälle, das Verhalten der Radiotoxizität für alle Abfallgebinde identisch ist. Die Anfahrkokille, die wenig Aktivität beinhaltet, unterschreitet das Referenzniveau der Radiotoxizität bereits nach 700 Jahren. Die Gebinde aus dem Hauptstrom der Verglasung benötigen 40.000 Jahre, um auf das Referenzniveau abzusinken. Aus diesen ermittelten Informationen lässt sich der Abfallstrom der hochdruck-kompaktierten Abfälle auf Basis eines Abfallgebundes vergleichen.

Dieser Abschnitt sollte belegen, dass das entwickelte Kopplungsprogramm im Zusammenwirken mit SCALE und MCNP in der Lage ist, anhand der deklarierten Aktivitäten der Nuklide, die abgeleiteten Gebinde-Eigenschaften, wie beispielsweise thermische Leistung und Dosisleistung, ohne Rückgriff auf die Berechnungsmethoden der Abfallkonditionierer unabhängig zu verifizieren. Die ermittelten Unsicherheiten der Berechnungen sind akzeptabel für eine verlässliche Produktkontrolle.

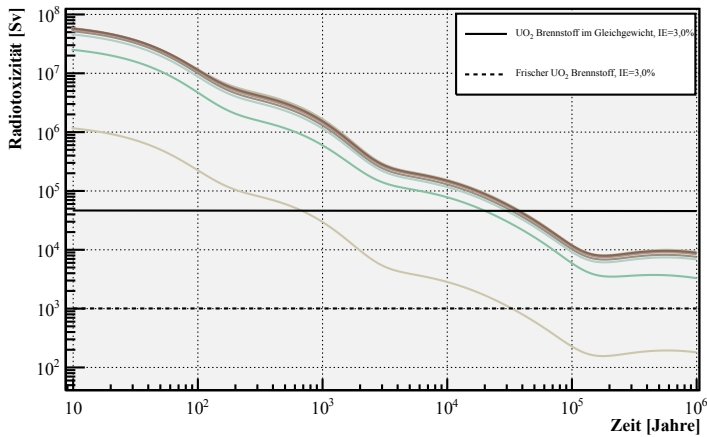


Abbildung 5.13: Radiotoxizität von 10 Abfallgebinden der Verglasungskampagne

### 5.3 Diskussion der Validierungsrechnungen

Die in diesem Kapitel vorgestellten Validierungen der angewendeten Simulationscodes dienen dazu, die allgemeine Genauigkeit der Simulationen zu ermitteln und daraus Rückschlüsse auf die bestmöglich erzielbare Genauigkeit für ein Prüfprogramm zu ermitteln. Es zeigte sich, dass für die der Abbrandrechnungen bei dem Ergebnisvergleich sowohl für mittlere als auch hohe Abbrände die Werte in einem Fehlerbereich zwischen  $\pm 25\%$  liegen. Einige Isotope, hauptsächlich der Minoren Actinoiden, weisen Abweichungen von bis zu  $70\%$  auf.

Diese Abweichungen sind auf die Tatsache zurückzuführen, dass die zu Grunde liegenden Wechselwirkungsquerschnitte, insbesondere der Minoren Actinoiden, teilweise mit hohen Unsicherheiten belegt sind und somit eine Fehlerquelle bei der Simulation bilden. Daher sollten für die Berechnungen stets die neusten Evaluierungen der Wechselwirkungsbibliotheken Anwendung finden, um solche systematischen Fehler zu minimieren.

Ein weiteres Problem zeigt sich bei der Dokumentation der Vergleichsdaten, insbesondere im Fall des Obrigheim-Benchmarks. Hier sind nicht alle relevanten Informationen bezüglich der Messungen veröffentlicht, sodass nur Mittelwerte aus der Literatur herangezogen werden können, um fehlende Parameter zu ergänzen. Dies führt zu weiteren Unsicherheiten

in der Modellierung, was sich auch in den Ergebnissen widerspiegelt.

Der synthetische Benchmark NEA-6227 zeigt, dass die angewendeten SCALE-Modelle im selben Unsicherheitsbereich liegen, wie die übrigen Reaktorphysikcodes.

Insgesamt lässt sich jedoch festhalten, dass die angewendeten Simulationscodes SCALE 6.0 und 6.1 relativ genaue Ergebnisse liefern, auf deren Basis eine Untersuchung der Abfalleigenschaften unterschiedlicher Abfallströme aus Wiederaufarbeitungsanlagen möglich ist. Der Vergleich zwischen den durch das Kopplungsprogramm generierten Produkteigenschaften und den deklarierten Werten aus der Gebindebegleitdokumentation der VEK-Gebinde weist darauf hin, dass die Methodik zur Generierung der Modelle und Ableitung der radiologischen Eigenschaften geeignet ist. Somit kann das Kopplungsprogramm prinzipiell auch für die Berechnung der Produkteigenschaften von anderen Abfallströmen angewendet werden. Dabei muss die generische MCNP-Vorlage ausgetauscht werden, um beispielsweise die Heterogenität der Abfallmatrix zu erfassen.

## 6 Ermittlung der Isotopenkorrelationen

Das Verhalten der unterschiedlichen Nuklide während der Standzeit eines Brennelements im Kernreaktor ist auf die "Batengleichung" zurückzuführen. Die zeitliche Änderung der Nuklidkonzentrationen ist gegeben durch, vgl. (Gauld u. a., 2011):

$$\frac{dN_i}{dt} = \text{Erzeugungsrate} - \text{Umwandlungsrate} - \text{Zerfallsrate} \quad (6.1)$$

Die Erzeugungsrate setzt sich zusammen aus allen Reaktionen, die zum Aufbau des betrachteten Nuklids  $N_i$  während der Standzeit in einem Kernreaktor führen:

$$\text{Erzeugungsrate} = \sum_j \gamma_{ij} \sigma_{f,j} N_j \phi + \sigma_{c,i-1} N_{i-1} \phi + \bar{\lambda}_i \bar{N}_i \quad (6.2)$$

Hierbei entspricht der erste Term dem Anteil aller durch Spaltprozesse erzeugten Nuklide.  $\gamma_{ij}$  symbolisiert die Spaltausbeute des Nuklids  $i$  bezogen auf das spaltbare Nuklid  $j$ .  $\sigma_{f,j}$  entspricht dem Spaltquerschnitt und  $\phi$  dem ermittelten Neutronenfluss.

Der zweite Term symbolisiert die Erzeugung durch Neutroneneinfangreaktionen bei anderen Nukliden, die zur Bildung des betrachteten Nuklids führen. Dieser Term gilt stellvertretend für eine ganze Reihe von Reaktionen, wie beispielsweise (n,2n), (n,p), (n, $\gamma$ ).

Der verbleibende dritte Term der Erzeugungsrate bezieht sich auf den radioaktiven Zerfall anderer Nuklide, deren Endprodukte das betrachtete Nuklid bilden. Der erste Verlustterm ist gegeben durch:

$$\text{Umwandlungsrate} = -(\sigma_{f,i} + \sigma_{c,i}) N_i \phi \quad (6.3)$$

Dieser Term bezieht sich auf die Umwandlung des betrachteten Nuklids in Abhängigkeit der Neutronenreaktionen während des Reaktorbetriebs. Hierbei werden alle Reaktionsraten, die durch Neutroneneinfang hervorgerufen werden, und somit die Konzentration  $N_i$  im betrachteten Zeitraum mindern, betrachtet. Für die Erzeugungsrate steht  $\sigma_{c,i}$  symbolisch für eine ganze Reihe von Reaktionsraten. Der zweite Verlustterm entsteht durch radioaktiven Zerfall des Nuklids  $i$  im Betrachtungszeitraum:

$$\text{Zerfallsrate} = -\lambda_i N_i \quad (6.4)$$

Somit wird die gesamte Ratengleichung für ein Nuklid folgendermaßen definiert:

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_j \gamma_{ij} \sigma_{f,j} N_j \phi + \sigma_{c,i-1} N_{i-1} \phi + \bar{\lambda}_i \bar{N}_i - (\sigma_{f,i} + \sigma_{c,i}) N_i \phi - \lambda_i N_i \quad (6.5)$$

Die Gleichung besitzt Gültigkeit für ein homogenes Medium mit einem zeitlich und energetisch gemittelten Neutronenfluss sowie an das Problem angepasste Gruppenwechselwirkungsquerschnitte. Im Falle der SCALE-Abbrandrechnungen werden die Neutronenflüsse und die problemabhängigen Reaktionsraten durch die Neutronentransportcodes NEWT und KENO ermittelt, vgl. Abschnitt 3.2.1.

Durch Kopplungsroutinen werden die energieabhängigen Neutronenflüsse und Wechselwirkungsquerschnitte in drei Energiebereiche zusammengefasst, in den thermischen, epithermischen und schnellen Anteil des Neutronenspektrums. Diese vorliegenden Daten werden durch ORIGIN-S verwendet, um die Änderung des Nuklidinventars nach einer Zeitspanne  $\Delta t$  zu bestimmen.

Hierbei wird angenommen, dass sich die Flüsse und Wechselwirkungsquerschnitte während des Betrachtungszeitraums nicht ändern. Daher muss durch den Benutzer sichergestellt werden, dass die zeitliche Diskretisierung des Problems nicht zu grob ausfällt, um Abweichungen durch fehlerhafte Flussberechnungen zu vermeiden. Dieses Vorgehen der iterativen Lösung zwischen Neutronentransportcodes und Abbrandcode ist die mathematische Grundlage für fast alle gängigen Reaktorphysikcodes.

Aus den berechneten Nuklidkonzentrationen zu den Zeitpunkten  $t_0 \cdots t_i \cdots t_n$  lässt sich das zeitliche Verhalten der unterschiedlichen Nuklide ableiten. Üblicherweise werden hierzu eine oder mehrere Nuklidkonzentrationen bzw. die daraus abgeleiteten Aktivitäten in Relation

zu einem zu bestimmenden Parameter gesetzt. Durch Regressionsanalysen werden aus dem Verlauf der Aktivität oder der Aktivitätsverhältnisse einfache Funktionen abgeleitet, aus denen sich der gesuchte Parameter bestimmen lässt. Als Beispiel hierfür sei die Bestimmung des Abbrands oder der Kühlzeit genannt. Diese Methodik wird in der Literatur häufig auch unter dem Begriff Korrelationsrechnung geführt (Hermann u. Berndt, 1983). In den nachfolgenden Abschnitten wird dieser Begriff ebenfalls verwendet.

Die Isotopenkorrelation ermöglicht durch sowohl zerstörender als auch zerstörungsfreier Messmethoden präzise Aussagen über die Brennstoffzusammensetzung und den abgeleiteten Eigenschaften der Abfallgebinde zu treffen.

In Gleichung 6.5 ist der Neutronenfluss ein wesentlicher Parameter. In der Realität hängt diese Größe von den angewendeten Reaktorparametern ab. Daher erfolgt in diesem Kapitel die Diskussion der Reaktorparameter im Hinblick auf ihren Einfluss auf die Korrelationsfunktionen.

## 6.1 Darstellung der verwendeten Brennelementmodelle

Die Ermittlung der unterschiedlichen Korrelationsfunktionen basiert auf SCALE-Abbrandrechnungen, die für unterschiedliche Brennelementlayouts durchgeführt wurden. In diesem Abschnitt werden die geometrischen Aspekte der Brennelementmodelle diskutiert.

Insgesamt werden für die Berechnung der Korrelationsfunktionen vier Druckwasserreaktorbrennelemente sowie drei Brennelemente für Siedewasserreaktoren verwendet. Die Wahl der Layouts bestimmt das Zeitverhalten während der Standzeit im Reaktor. Ein maßgeblicher Faktor ist hierbei das Verhältnis zwischen Moderator und Brennstoff in einer Einheitszelle des Brennelements. Das Verhalten der Vier-Faktoren-Gleichung in Bezug auf die Variationen dieses Faktors wurde bereits in Kapitel 2 erörtert. Die Betrachtung der unterschiedlichen Brennelementdesigns dient dazu, die Variabilität der unterschiedlichen Korrelationsfunktionen hinsichtlich der Geometrie der Brennelemente zu untersuchen. Die Wahl der betrachteten Brennelemente beschränkt sich auf Designs, wie sie in europäischen Kernreaktoren zum Einsatz kommen. Die geometrischen Parameter der betrachteten Druckwasserelemente sind in Tabelle 6.1 dargestellt, die ausgewählten Siedewasserelemente stehen in Tabelle 6.2. Aus den Tabellen 6.1 und 6.2 wurden die entsprechenden Modelle



Tabelle 6.1: Geometrieparameter für Druckwasserbrennelemente

| Parameter                          | DWR-A  | DWR-B  | DWR-C     | DWR-D  |
|------------------------------------|--------|--------|-----------|--------|
| Geometrie                          | 14x14  | 16x16  | 17x17     | 18x18  |
| Brennstabanzahl                    | 179    | 236    | 264       | 300    |
| BE-Durchmesser [cm]                | 19,72  | 22,96  | 21,4      | 22,95  |
| BE-Gesamtlänge [m]                 | 2,90   | 4,83   | 4,06      | 4,83   |
| Stablänge [m]                      | 2,63   | 4,42   | 3,86      | 4,43   |
| Pellet-Durchmesser [cm]            | 0,929  | 0,911  | 0,819     | 0,806  |
| Pellet-Dichte [g/cm <sup>3</sup> ] | 10,4   | 10,4   | 10,4      | 10,4   |
| Lineare Stableistung [kW/m]        | 22,0   | 21,1   | 20,0      | 16,6   |
| Claddingdicke [mm]                 | 0,62   | 0,725  | 0,57      | 0,64   |
| Claddingmaterial                   | Zirc-4 | Zirc-4 | Zirc-4,M5 | Zirc-4 |

für SCALE entwickelt. Die Modelle zur Berechnung des Brennstoffinventars werden mittels der zweidimensionalen Abbrandrechnung TRITON/NEWT durchgeführt. Um den Einfluss der axialen Neutronenflussverteilung zu berücksichtigen, sind die Modelle zur Bestimmung der Aktivierungsprodukte in den Hüllrohrmaterialien und Endstücken dreidimensional aufgebaut. Die 3D-Modelle sind ausgelegt für die TRITON/KENO-Routine. Abbildung 6.1 beinhaltet die Gegenüberstellung des geometrischen Aufbaus zwei der betrachteten Druckwasserbrennelemente.

Die generelle Validierung dieser Modelle erfolgte in Abschnitt 5 und zeigt, dass sowohl NEWT als auch KENO geeignet sind, die Änderungen des Nuklidinventars während der Standzeit im Reaktor hinreichend genau zu bestimmen.

## 6.2 Einfluss der Reaktorparameter

Sowohl die Wahl des Brennelementlayouts als auch die Reaktorparameter beeinflussen das Zeitverhalten des Brennstoffinventars. Um die Variabilität der unterschiedlichen Korrelationsfunktionen auch in Bezug auf die Reaktorparameter, wie u.a. Moderatorordichte, Void-Koeffizient, Brennstofftemperatur, zu untersuchen, müssen unterschiedliche Variationsrechnungen durchgeführt werden. Aus den Ergebnissen der Abbrandrechnungen werden die Sensitivitätsparameter einzelner Nuklide oder Nuklidverhältnisse auf die Reaktorparameter abgeschätzt. Dieses Vorgehen ist notwendig, um die für das Prüfprogramm entschei-

Tabelle 6.2: Geometrieparameter für SWR-Brennelemente

| Parameter                          | SWR-A  | SWR-B  | SWR-C  |
|------------------------------------|--------|--------|--------|
| Geometrie                          | 9x9    | 10x10  | 6x6    |
| Anzahl an Brennstäben              | 72     | 91     | 35     |
| BE-Durchmesser [cm]                | 13,4   | 13,5   | 10,0   |
| BE-Gesamtlänge [m]                 | 4,47   | 4,47   | 3,86   |
| Stablänge [m]                      | 4,07   | 4,08   | 3,30   |
| Pellet-Durchmesser [cm]            | 0,95   | 0,867  | 1,25   |
| Pellet-Dichte [g/cm <sup>3</sup> ] | 10,5   | 10,5   | 10,0   |
| Lineare Stableistung [kW/m]        | 15,8   | 14,3   | 20,0   |
| Claddingdicke [mm]                 | 0,665  | 0,605  | 0,89   |
| Claddingmaterial                   | Zirc-2 | Zirc-2 | Zirc-2 |

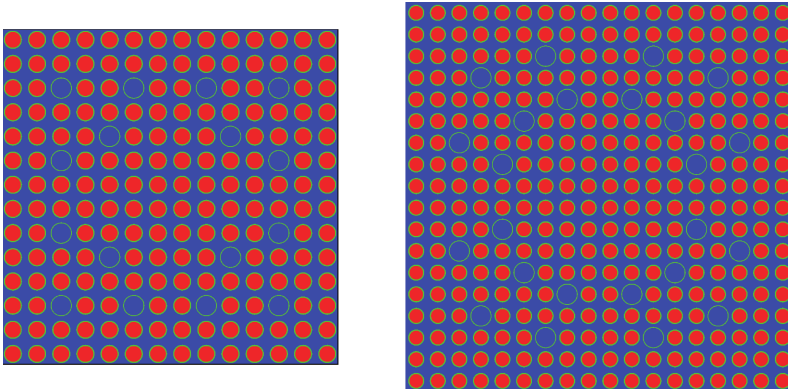


Abbildung 6.1: Links - DWR-A vom Typ 14x14, Rechts -DWR-D vom Typ 18x18

Tabelle 6.3: Variierte Reaktorparameter

| Parameter  | Minimum | Standard | Maximum |
|--|---------|----------|---------|
| Brennstoffdichte $[\text{g}/\text{cm}^3]$        | 8,7     | 10,5     | 10,96   |
| Brennstofftemperatur $[K]$                       | 800     | 900      | 1500    |
| Anreicherung $[\text{Gew.}\%]$                   | 1,5     | 3,0      | 5,0     |
| Claddingtemperatur $[K]$                         | 500     | 600      | 700     |
| Moderatortemperatur $[K]$                        | 500     | 580      | 600     |
| Moderatordichte $[\text{g}/\text{cm}^3]$         | 0,4     | 0,7      | 0,8     |
| Borsäurekonzentration $[\text{Gew.}\text{-ppm}]$ | 100     | 450      | 1500    |
| Spezifische Leistung $[\text{MW}/\text{t}_{SM}]$ | 10      | 36       | 50      |

Tabelle 6.4: Sensitivitätsparameter der Schlüsselnuklide

| Parameter             | $S(^{106}\text{Ru})$ | $S(^{134}\text{Cs})$ | $S(^{137}\text{Cs})$ | $S(^{154}\text{Eu})$ | $S(^{125}\text{Sb})$ |
|-----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| Brennstoffdichte      | $1,19^{-3}$          | $1,57^{-2}$          | $5,20^{-4}$          | $4,24^{-2}$          | $6,87^{-3}$          |
| Brennstofftemperatur  | $2,27^{-3}$          | $6,99^{-3}$          | $1,52^{-4}$          | $9,81^{-3}$          | $2,65^{-3}$          |
| Anreicherung          | $1,36^{-1}$          | $6,64^{-2}$          | $1,74^{-3}$          | $1,77^{-2}$          | $7,45^{-2}$          |
| Claddingtemperatur    | $2,16^{-6}$          | $1,87^{-6}$          | $9,94^{-8}$          | $1,24^{-5}$          | $9,67^{-7}$          |
| Moderatortemperatur   | $9,09^{-4}$          | $2,37^{-5}$          | $5,33^{-5}$          | $9,48^{-3}$          | $2,24^{-5}$          |
| Moderatordichte       | $8,30^{-3}$          | $5,36^{-2}$          | $2,38^{-3}$          | $1,65^{-1}$          | $2,50^{-2}$          |
| Borsäurekonzentration | $1,77^{-3}$          | $8,88^{-3}$          | $3,70^{-4}$          | $2,69^{-2}$          | $4,89^{-3}$          |
| Spezifische Leistung  | $2,75^{-1}$          | $1,51^{-1}$          | $2,53^{-2}$          | $1,87^{-2}$          | $1,74^{-1}$          |

den den Korrelationsfunktionen konservativ die Unsicherheiten abzuschätzen. Die variierten Reaktorparameter sind in Tabelle 6.3 zusammengefasst.

Tabelle 6.4 stellt die Sensitivität der wichtigsten Schlüsselnuklide für die Charakterisierung von nuklearen Abfällen auf die Parametervariation dar. Als Sensitivitätsparameter wird die relative Unsicherheit der Schlüsselnuklidaktivitäten festgelegt:

$$S(^A\text{X}) = \frac{\sigma_i(^A\text{X})}{\mu_i(^A\text{X})} \quad (6.6)$$

Hierbei ist  $\mu_i$  der Mittelwert der ermittelten Nuklidaktivität in Abhängigkeit des Variationsparameters und  $\sigma_i$  dementsprechend die Standardabweichung. Der Sensitivitätsparameter ist somit einheitenlos. Bei der Analyse der Ergebnisse zeigt sich, dass sowohl die anfängliche Anreicherung, als auch die Parameter Moderatordichte die größten Sensi-

vitätsparameter aufweisen. Die spezifische Leistung ist das Ergebnis der angewendeten Reaktorparameter. In den Simulationseinstellung tritt diese jedoch ebenfalls als Parameter auf. Die anfängliche Anreicherung eines Brennstoffs beeinflusst maßgeblich die Eigenschaften des Neutronenfluss innerhalb des Brennstoffs. Da die Abbrandrechnungen von einer konstanten Leistungsdichteverteilung während der Standzeit ausgehen, wird der Neutronenfluss an die spezifische Leistung angepasst. Die höhere Anreicherung bewirkt, dass für die geforderte Leistungsdichteverteilung ein geringerer Fluss notwendig ist. Im Fall der Variation der Parameter reduziert sich der integrale Neutronenfluss von  $4,08 \times 10^{14}$  n/s/cm<sup>2</sup> bei einer Anreicherung von 1,5 % auf  $3,15 \times 10^{14}$  n/s/cm<sup>2</sup> für die Anreicherung von 5,0 %. Dies bewirkt eine Änderung der Reaktionsraten im Brennstoff, was zu einem unterschiedlichem Verhalten beim Aufbau der Schlüsselnuklide führt.

Die Variation der Moderatordichte ist besonders für Siedewasserreaktoren von Bedeutung, da mit zunehmender axialer Temperatur des Moderators der Anteil an Wasserdampf zunimmt. Bei der Berechnung der Reaktivität ist dieser "Void-Koeffizient" ebenfalls von entscheidender Bedeutung, vgl. (Lamarsh u. Baratta, 2001). Die Abnahme der Moderatordichte bewirkt, dass die Moderationsfähigkeit sinkt. Somit ändert sich durch Aufhärtung auch das Neutronenspektrum. Bei den für die Charakterisierung der Abfälle notwendigen Schlüsselnuklide ändert sich vor allem die Konzentration des <sup>154</sup>Eu. Da dieses Nuklid durch Neutroneneinfangreaktionen erzeugt wird und einen großen Einfangsquerschnitt für thermische Neutronen aufweist, sinkt die Konzentration mit zunehmender Moderatordichte ab.

Eine Änderung der Leistungsdichte bewirkt verschiedene Ergebnismodifikationen. Zum einen führt eine geringere spezifische Leistung zu einer Verlängerung des Abbrandintervalls, um einen geforderten Zielabbrand zu erreichen und zum anderen bewirkt es eine Änderung der Neutronenbilanz, da weniger Spaltprozesse im Brennstoff auftreten. Eine geringere Leistung bewirkt eine höhere Moderatordichte, infolge einer niedrigeren Brennstoff- und Moderatortemperatur. Diese Parameter sind durch die thermohydraulischen Eigenschaften des Systems vorgegeben. Besonders deutlich wird die Änderung der Leistungsdichte für das Schlüsselnuklid <sup>106</sup>Ru. Durch die längere Verweildauer und der relativ kurzen Halbwertszeit von weniger als einem Jahr, unterscheidet sich die Nuklidkonzentration bereits deutlich während des Reaktorbetriebs.

Die Variation der Reaktorparameter hat gezeigt, dass die Schlüsselnuklide in unterschied-

licher Weise auf die Änderungen der Reaktorparameter reagieren. So besitzt das  $^{137}\text{Cs}$  nur eine geringe Abhängigkeit von den Reaktorparametern, wohingegen die übrigen Nuklide teils eine deutliche Abhängigkeit aufweisen. Die maximale Sensitivität weist  $^{106}\text{Ru}$  in Bezug auf die spezifische Leistung auf. Die Variation der Leistung zwischen 10 und 50  $[\text{MW}/t_{SM}]$  bewirkt eine Unsicherheit von 27% bezogen auf den Mittelwert der Studie. Die Simulationsreihe hat gezeigt, dass ein Prüfprogramm, welches auf den Ergebnissen von Abbrandrechnungen basiert, vor der Nutzung evaluiert werden muss, um sicherzustellen, dass die angewendeten Reaktorparameter in Übereinstimmung mit den in den realen Abfallströmen sind, damit ihre Eigenschaften möglichst exakt gestellt werden können. Die gewählten Reaktorparameter entstammen einer umfassenden Literaturrecherche, insbesondere den Ergebnissen aus der SFCOMPO-Datenbank und den Brennstoffstudien REBUS und ARIANE, vgl. (Belgonucleaire, 2002).

### 6.3 Abbrand und Abklingzeit

Üblicherweise wird bei bekannter Betriebshistorie bzw. Abbrand sowie Kühlzeit die Brennstoffzusammensetzung mit SCALE berechnet. Bei der Abfallcharakterisierung stehen diese grundlegenden Informationen nicht immer zur Verfügung, da die Abfallgebinde meist eine Mischung unterschiedlicher Abfälle sind. In diesem Fall müssen sogenannte charakteristische Abbrände und Kühlzeiten mit Hilfe von Isotopenkorrelationen festgestellt werden. Die Isotopenkorrelationen sind generell in drei Bereiche zu unterteilen (Hermann u. Berndt, 1983):

- Korrelationen zwischen  $\gamma$ -emittierenden Spaltprodukten und den Eigenschaften wie Schwermetallzusammensetzung oder Abbrand
- Korrelationen zwischen den Schwermetallisotopen und dem Abbrand
- Korrelationen zwischen stabilen Spaltprodukten, wie beispielsweise  $^{148}\text{Nd}$  und dem Abbrand

Das Prüfprogramm soll unabhängig, anhand der deklarierten Schlüsselnuklide, die Eigenschaften des Abfalls untersuchen, um die Evaluierung der Inventardeklaration zu unterstützen. Hierfür kommen hauptsächlich passiv messbare  $\gamma$ -Emitter zum Einsatz. Passiv bedeutet in diesem Zusammenhang ohne die Nutzung einer externen Strahlungsquelle. Die

Literatur bietet eine Vielzahl von Korrelationsmöglichkeiten zwischen den unterschiedlichen Spaltprodukten und den abzuleiteten Kenngrößen. Aus diesem Grund werden in diesem Abschnitt ausschließlich Korrelationsfunktionen besprochen, die auf den  $\gamma$ -Emittern basieren.

In Anbetracht dessen, dass die Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen aufgrund der Nachzerfallswärme und der hohen Dosisleistung nicht unmittelbar nach Reaktorentladung stattfinden kann, ist die Annahme eines Zeitfensters von mehr als drei Jahren Kühlzeit realistisch. In Tabelle 6.5 sind die stärksten  $\gamma$ -emittierenden Nuklide für einen Brennstoff mit einem Abbrand von 45 [GWd/t<sub>S</sub>M] zusammengefasst.

Tabelle 6.5:  $\gamma$ -emittierende Spaltprodukte, die dominierende  $\gamma$ -Linie bezieht sich auf das Schlüsselnuklid sowie die im Gleichgewicht stehenden Tochternuklide

| Isotope                              | Aktivität [TBq]    | A(3a)/A(0) [%] | $\gamma$ -Linie [MeV] |
|--------------------------------------|--------------------|----------------|-----------------------|
| $^{137}\text{Cs} + ^{137m}\text{Ba}$ | $9,61 \times 10^3$ | 93,3           | 0,662                 |
| $^{144}\text{Ce} + ^{144}\text{Pr}$  | $6,41 \times 10^3$ | 6,96           | 2,180                 |
| $^{106}\text{Ru} + ^{106}\text{Rh}$  | $6,39 \times 10^3$ | 12,95          | 0,621                 |
| $^{134}\text{Cs}$                    | $2,98 \times 10^3$ | 36,48          | 0,604                 |
| $^{154}\text{Eu}$                    | $2,73 \times 10^2$ | 78,51          | 1,274                 |
| $^{125}\text{Sb}$                    | $1,82 \times 10^2$ | 47,10          | 0,636                 |

Die Tabelle zeigt, dass  $^{144}\text{Ce}$  sich nicht als Marker eignet, da nach drei Jahren Kühlzeit bereits mehr als 90 % der ursprünglichen Aktivität zerfallen ist. Dies liegt an der kurzen Halbwertszeit von  $^{144}\text{Ce}$  von 284,9 Tagen. Für die passive Messtechnik bleiben somit bei längeren Kühlzeiten von bis zu 20 Jahren oder mehr, nur  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{154}\text{Eu}$  für die Abbrandbestimmung.

Im ersten Teil wird mittels Isotopenkorrelation die Kühlzeit eines Brennstoffs bestimmt. Der zweite Teil befasst sich mit der Ermittlung des erzielten Abbrands. Da nicht davon auszugehen ist, dass die Deklaration alle Herkunftparameter der Brennelemente und ihrer Reaktorparameter umfasst, sind die Korrelationen mit Unsicherheiten behaftet. Deshalb müssen die untersuchten Korrelationsfunktionen auch auf die Unsicherheit der Reaktorparameter hin untersucht werden.

Bevor gezielt auf den Kurvenverlauf der unterschiedlichen Korrelationen eingegangen wird, soll bei fünf möglichen Schlüsselnukliden skizziert werden, wie diese Isotope während der

Standzeit im Reaktor entstehen.

Das Isotop  $^{137}\text{Cs}$  liegt sowohl für  $^{235}\text{U}$  als auch  $^{239}\text{Pu}$  auf dem oberen Plateau der Doppelhöckerkurve, (vgl. Abbildung 2.2 auf Seite 31). Das Isotop ist nicht abgeschirmt, wodurch alle Spaltreaktionen entlang der Isobaren 137 im  $^{137}\text{Cs}$  enden. Zudem besitzt das Isotop einen vergleichsweise geringen Einfangquerschnitt für eine  $(n,\gamma)$ -Reaktion von 0,25 b bei einer Neutronenenergie von 25,3 meV. Daher ist die Änderung der Nuklidkonzentration fast ausschließlich von der Spaltrate abhängig, da auch  $(n,\gamma)$ -Reaktionen im  $^{136}\text{Xe}$  zur Bildung von  $^{137}\text{Cs}$  beitragen und somit den Verlust von  $^{137}\text{Cs}$  durch  $(n,\gamma)$ -Reaktionen kompensieren. Der Beitrag von  $^{136}\text{Cs}$  ist zu vernachlässigen, da dieses Isotop von  $^{136}\text{Xe}$  abgeschirmt ist. Die Erzeugungspfade für  $^{137}\text{Cs}$  sind in Abbildung 6.2 dargestellt. Die Nuklidkonzentration nimmt linear mit steigendem Zielabbrand zu und ist durch die relativ lange Halbwertszeit von 30,08 Jahren ein ideales Leitisotop für die Bestimmung der Brennstoffzusammensetzung.

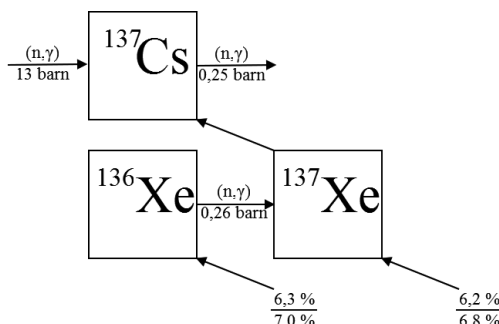


Abbildung 6.2: Entstehung von  $^{137}\text{Cs}$  als Spaltprodukt und durch  $(n,\gamma)$ -Reaktionen aus  $^{136}\text{Xe}$

$^{134}\text{Cs}$  ist im Gegensatz zu  $^{137}\text{Cs}$  kein direktes Spaltprodukt, da die Isobare 134 durch  $^{134}\text{Xe}$  abgeschirmt ist. Aus diesem Grund baut sich  $^{134}\text{Cs}$  nicht linear mit dem Abbrand auf, sondern wird erst durch  $(n,\gamma)$ -Reaktion aus dem  $^{133}\text{Cs}$  erzeugt. Die unabhängige Spaltausbeute, die direkt zum  $^{134}\text{Cs}$  führt, liegt im Bereich zwischen  $3,8 \times 10^{-8}$  für die thermische Spaltung von  $^{235}\text{U}$  und  $3,4 \times 10^{-6}$  für  $^{239}\text{Pu}$  laut der ENDF-B/VII.0-Datenbank. Die Erzeugung von  $^{133}\text{Cs}$  findet ebenfalls zeitverzögert statt, da das  $^{133}\text{Xe}$  durch einen  $\beta^-$ -Zerfall mit einer Halbwertszeit von 5,2 Tagen in  $^{133}\text{Cs}$  zerfällt. Durch den zeitverzögerten Aufbau zeigt sich eine quadratische Abhängigkeit vom Abbrand. Ein nicht vernachlässigbarer Aspekt ist, dass  $^{134}\text{Cs}$  durch Neutroneneinfang in  $^{135}\text{Cs}$  übergeht. Der thermische Wechselwirkungs-

querschnitt liegt für diese Reaktion bei 139,7 b. Somit ist bei fortschreitendem Abbrand davon auszugehen, dass ein Teil des gebildeten  $^{134}\text{Cs}$  in das Isotop  $^{135}\text{Cs}$  umgewandelt wird.

Die Isotope  $^{106}\text{Ru}$  und  $^{106}\text{Rh}$  stehen im säkularen Gleichgewicht.  $^{106}\text{Ru}$  ist wie  $^{137}\text{Cs}$  ein direktes Spaltprodukt. Es liegt jedoch nicht direkt auf dem Plateau der Doppelhöckerkurve, sondern für die thermische Spaltung von  $^{235}\text{U}$  bereits auf der Flanke. Daher unterscheiden sich die Spaltausbeuten für den Vergleich zwischen  $^{235}\text{U}$  sowie  $^{239}\text{Pu}$  um fast eine Größenordnung. Der Einfangquerschnitt für  $^{106}\text{Ru}$  liegt bei 0,14 b für thermische Neutronen, so dass die Umwandlung durch Neutroneneinfang zu vernachlässigen ist.

Als direktes Spaltprodukt kommt auch  $^{125}\text{Sb}$  in Betracht. Dieses Isotop liegt in der Senke der Doppelhöckerkurve, sowohl für  $^{235}\text{U}$  als auch  $^{239}\text{Pu}$ . Der Einfangquerschnitt beträgt 5,0 b, wohingegen der Einfangquerschnitt bei  $^{124}\text{Sn}$  nur bei 0,13 b liegt, wodurch es zu keiner Kompensation kommt wie im Fall des  $^{137}\text{Cs}$ .

Die Isotope  $^{144}\text{Ce}$  sowie  $^{144}\text{Pr}$  stehen im säkularen Gleichgewicht und liegen auf dem Plateau der Doppelhöckerkurve.  $^{144}\text{Ce}$  ist ebenfalls ein direktes Spaltprodukt mit einem Einfangquerschnitt von 1,0 b. Das Tochternuklid  $^{144}\text{Nd}$  emittiert energiereiche  $\gamma$ -Quanten von 2,18 MeV. Jedoch ist die Halbwertszeit von weniger als einem Jahr zu kurz für ein verlässliches Schlüsselnuklid zur Bestimmung des Abbrands bei Abfallbinden mit langen Kühlzeiten.

Das Isotop  $^{154}\text{Eu}$  ist ebenfalls ein Spaltprodukt mit hochenergetischen  $\gamma$ -Linien, siehe Tabelle 6.5, die durch eine passive  $\gamma$ -Spektroskopie gemessen werden können. Die Halbwertszeit von 8,6 Jahren führt dazu, dass selbst bei längeren Kühlzeiten dieses Isotop noch als Schlüsselnuklid verwendbar ist. Die Erzeugung von  $^{154}\text{Eu}$  während der Standzeit im Kernreaktor wird von mehreren Faktoren beeinflusst. Das Isotop liegt auf der Flanke der Doppelhöckerkurve, wodurch sich die effektiven Spaltraten während des Reaktorbetriebs für dieses Isotop ändern und die Isobare 154 ist durch das  $^{154}\text{Sm}$  abgeschirmt. Daher ist  $^{154}\text{Eu}$  kein direktes Spaltprodukt und wird vornehmlich durch den Neutroneneinfang im  $^{153}\text{Eu}$  gebildet.  $^{154}\text{Eu}$  zeigt ein ähnliches Verhalten wie  $^{134}\text{Cs}$ . Der Aufbau von  $^{153}\text{Eu}$  geht jedoch wiederum auf mehrere Reaktionsmöglichkeiten zurück. Weiter muss bei  $^{154}\text{Eu}$  beachtet werden, dass der Neutroneneinfangquerschnitt im thermischen Bereich bei 1845 b liegt, wodurch bei längeren Standzeiten ein nicht zu vernachlässigender Anteil des  $^{154}\text{Eu}$  in  $^{155}\text{Eu}$  übergeht. Diese benannten Eigenschaften und die Auswirkungen auf die Nuklidkonzentration sind bei der Berechnung der Korrelationsfunktionen, die auf  $^{154}\text{Eu}$  basieren,



zu beachten.

Aus den dargestellten Schlüsselnukliden sollen mittels der Isotopenkorrelationsmethode relevante Eigenschaften des Abfalls ermittelt werden. Hierzu wird zunächst die Korrelationsfunktion für die Bestimmung der Kühlzeit ermittelt. Aus der Literatur ist eine Korrelationsmethode für die Bestimmung der Kühlzeit bekannt (Phillips u. a., 1979)

$$\frac{A(^{154}\text{Eu})}{A(^{134}\text{Cs})} \approx f(t) \quad (6.7)$$

Durch das Verhältnis der Schlüsselnuklide  $^{154}\text{Eu}$  und  $^{134}\text{Cs}$  lässt sich die Kühlzeit abschätzen. Da die Isotope unterschiedliche Halbwertszeiten aufweisen, 8,6 Jahre für  $^{154}\text{Eu}$  und 2,06 Jahre für  $^{134}\text{Cs}$ , nimmt das Verhältnis mit fortschreitender Kühlzeit zu. Die Kurvenform der Korrelation ist einzig von den unterschiedlichen Halbwertszeiten abhängig und lässt sich durch folgende Funktion beschreiben:

$$CT \left( \frac{A(^{154}\text{Eu})}{A(^{134}\text{Cs})} \right) = a_0 + a_1 \times \ln \left( \frac{A(^{154}\text{Eu})}{A(^{134}\text{Cs})} \right) \quad (6.8)$$

Hierbei ist die Konstante  $a_1$  einzig von den unterschiedlichen Halbwertszeiten abhängig,  $a_0$  hingegen von den verschiedenen Reaktorparametern. Sowohl  $^{154}\text{Eu}$  als auch  $^{134}\text{Cs}$  sind indirekte Spaltprodukte und weisen somit ein ähnliches Verhalten während der Standzeit im Reaktor auf. Um das Verhalten der Korrelation genauer zu beschreiben, wurden die in Tabelle 6.1 sowie 6.2 dargelegten Brennelemente simuliert und das Abbrandverhalten des  $A(^{154}\text{Eu})/A(^{134}\text{Cs})$ -Verhältnisses graphisch aufgetragen. Das Verhältnis dieser beiden Nuklide besitzt ebenfalls eine Abhängigkeit vom Abbrand, dieses Verhalten wurde durch die Parametervariation aus Abschnitt 6.2 bestätigt. Hierzu wurden aus den Ergebnissen der Abbrandrechnungen für jeden Abbrandschritt ein zusätzlicher Zerfall von bis zu 30 Jahren Kühlzeit berechnet und die Korrelationsparameter durch Kurvenanpassung ermittelt.

Somit wurden 10.960 verschiedene Kombinationen der Reaktorparameter und des erzielten Abbrands für die Bestimmung der Kühlzeit-Korrelation verwendet. Die höchste Abweichung von dem Mittelwert der Studie findet sich für den Fall eines Brennstoffs mit geringer spezifischer Leistung. Bei einer geringen Leistung verlängert sich das Abbrandintervall, um den geforderten Zielabbrand zu erreichen. Hierbei kommt es aufgrund der kurzen Halbwertszeit des  $^{134}\text{Cs}$  bereits zur Standzeit im Reaktor zum Zerfall, wodurch das Verhältnis der Schlüsselnuklide beeinflusst wird. Die Ergebnisse der Parametervariation sind in Abbildung 6.3 dargestellt. Zu Beginn der Standzeit überwiegt der Aufbau des  $^{154}\text{Eu}$ . Je nach

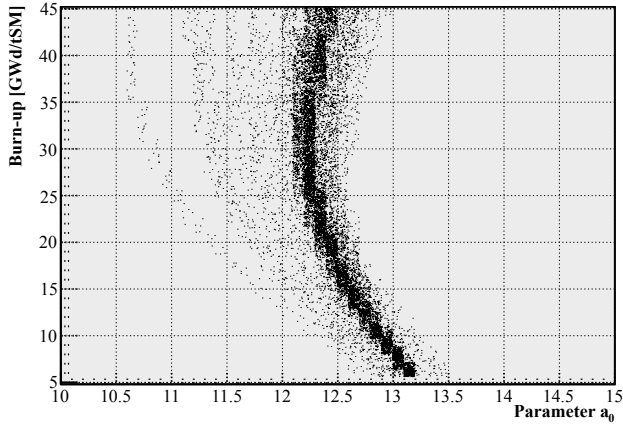


Abbildung 6.3: Abhängigkeit des Aktivitätsverhältnis der Schlüsselnuklide vom Abbrand

Reaktortyp und Reaktorparameter zeigt sich, dass eine Sättigung der Aufbaurate des  $^{154}\text{Eu}$  zwischen 27 und 30  $\text{GWd}/t_{SM}$  eintritt. Im weiteren Verlauf dominiert hingegen die Umwandlung von  $^{154}\text{Eu}$  durch Neutroneneinfang in das  $^{155}\text{Eu}$ . Aus diesem Verhältnis lässt sich der Abbrand nicht abschätzen, da die Korrelation uneindeutig ist. Durch Festlegung zweier begrenzender Funktionen lässt sich mittels dieses Verhältnis die Kühlzeit abschätzen. Um die Schwankungsbreite des  $a_0$ -Parameters konservativ abzuschätzen, werden die minimalen und maximalen Werte aller durch Abbrandrechnung erzeugten Nuklidverhältnisse als Begrenzungen des Parameterraums festgelegt. Die Verhältnisse von 0,034 und 0,05 dienen als untere und obere Grenze. Das daraus resultierende Verhalten der Kühlzeitkorrelation ist in Abbildung 6.4 ersichtlich. Aufgrund der Unsicherheit des  $a_0$ -Parameters, bedingt durch die unbekannten Reaktorparameter, weist die durch Korrelationen bestimmte Kühlzeit eine Unsicherheit von etwa einem Jahr auf. Die Werte der ermittelten Parameter  $a_0$  und  $a_1$  finden sich in Tabelle 6.6.

Tabelle 6.6: Ermittelte Werte der Kühlzeitkorrelation

| Parameter | Untere Grenze       | Obere Grenze        |
|-----------|---------------------|---------------------|
| $a_0$     | $1.162 \times 10^1$ | $1.299 \times 10^1$ |
| $a_1$     | $3.880 \times 10^0$ | $3.880 \times 10^0$ |

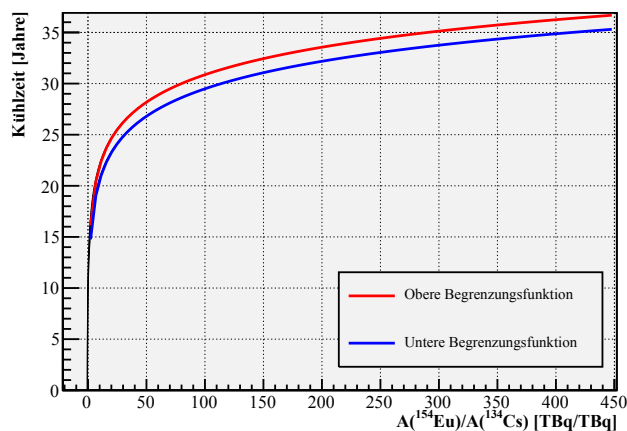


Abbildung 6.4: Verhalten der  $A(^{154}\text{Eu})/A(^{134}\text{Cs})$ -Korrelation

Die Ermittlung der Kühlzeit ist die zentrale Berechnung bei der Begutachtung von Abfallgebinden aus der Wiederaufarbeitung. Die übrigen Korrelationen für die Bestimmung des Abbrands oder der Schwermetallzusammensetzungen werden üblicherweise ohne Kühlzeit oder mit einer fixierten Kühlzeit von beispielsweise drei Jahren bestimmt. Daher müssen die ermittelten Schlüsselnuklidaktivitäten für die nachfolgenden Berechnungen auf die entsprechende Kühlzeit normiert werden.

Der Abbrand eines Brennelements ist der zentrale Parameter bei der Bestimmung des Nuklidvektors für Abfälle aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen. Durch die chemische Behandlung des Abfalls, beispielsweise bei der Auflösung der Brennelemente im Head-End der Wiederaufarbeitung, ändern sich die Nuklidverhältnisse, da die flüchtigen Elemente, wie beispielsweise die Spaltgase oder Caesium, leichter entfernt werden als andere Reststoffe. Diese Änderung der Verhältnisse muss bei der Begutachtung der Abfälle Berücksichtigung finden.

Um allgemein den Abbrand aus gemessenen Schlüsselnukliden abzuleiten, wird mittels der Isotopenkorrelation aus einem Massen- oder Aktivitätsverhältnis und vorliegenden Korrelationsfunktionen zwischen dem Verhältnis und dem Abbrand der entsprechende Wert abgeleitet. Aus Tabelle 6.5 geht hervor, dass nur eine begrenzte Anzahl von Radionukliden für die Korrelationsrechnung in Betracht kommen. Für die weitere Untersuchung werden

zwei Korrelationsfunktionen näher besprochen.

Bei der Anwendung der Korrelationstechniken mittels  $^{134}\text{Cs}$  muss aufgrund der kurzen Halbwertszeit von 2,06 Jahre die Kühlzeit möglichst exakt bestimmt werden, um Ungenauigkeiten in der Berechnung des Abbrands zu vermeiden. Die Korrelationsfunktionen für die Bestimmung des Abbrands sind, vgl. (Hermann u. Berndt, 1983):

$$f_1 \left( \frac{A(^{134}\text{Cs})}{A(^{137}\text{Cs})} \right) = a_1 \times x + a_2 \times x^2 \quad (6.9)$$

$$f_2 \left( \frac{A(^{154}\text{Eu})}{A(^{137}\text{Cs})} \right) = b_1 \times x + b_2 \times x^2 \quad (6.10)$$

Die Aktivitätsverhältnisse dienen als Indikatoren für den erzielten Abbrand. Der funktionelle Zusammenhang wird auf Basis von Polynomfunktionen zweiter Ordnung bestimmt. Der Grund hierfür ist, dass die Konzentration von  $^{154}\text{Eu}$  näherungsweise mit der zweiten Ordnung des Neutronenfluss korreliert. Nachteilig für die Korrelationsmethodik ist, dass die Nuklidverhältnisse von den Reaktorparametern abhängig sind, von denen jedoch ausgegangen werden muss, dass diese nicht Bestandteil einer Gebindebegleitdokumentation sind. Wie in Abschnitt 6.2 dargestellt wurde, stellt die anfängliche Anreicherung einen maßgeblichen Unsicherheitsfaktor bei der Bestimmung der Nuklidvektoren dar. Daher muss die Anreicherung als unbekannte Variable aufgefasst werden. Um die Unsicherheit durch diesen Parameter zu bestimmen, werden die Korrelationsfunktionen für unterschiedliche Anreicherungsgrade des Urandioxidbrennstoffs bestimmt.

Die Modellierung der Brennelemente erfolgt wiederum mittels TRITON/NEWT, die Ergebnisse der bestimmten Korrelationsparameter sind in Tabelle 6.7 dargestellt. Um die

Tabelle 6.7: Ermittelte Parameter der Korrelationsfunktionen

| Anreicherung [%] | $a_1$ | $a_2$ | $b_1$ | $b_2$              |
|------------------|-------|-------|-------|--------------------|
| 1,5              | 7,3   | 8,23  | 53,1  | $7,21 \times 10^3$ |
| 2,0              | 10,2  | 7,43  | 187,0 | $5,76 \times 10^3$ |
| 4.0              | 19,8  | 5,49  | 520,0 | $2,19 \times 10^3$ |
| 4.5              | 20,1  | 7,91  | 641,0 | $9,06 \times 10^2$ |

ermittelten Korrelationsfunktionen zu testen, wurden die Ergebnisse der Brennstoffstudi-

en der SFCOMPO-Bibliothek<sup>1</sup> als Vergleichswerte hinzugezogen. Die Ergebnisse der Datenbank beziehen sich auf den Zeitpunkt der Reaktorentladung. Sowohl die Korrelation mittels  $^{154}\text{Eu}$  zu  $^{137}\text{Cs}$  als auch  $^{134}\text{Cs}$  zu  $^{137}\text{Cs}$  ergeben eine gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der SFCOMPO-Datenbank. Es ist zu beobachten, dass die Datenbank keine Validierungen für hochabgebrannte Brennelemente beinhaltet, ebenfalls ist die Anreicherung im Mittel kleiner als 3,0 Gew. %  $^{235}\text{U}$ . Die Ergebnisse der SFCOMPO beinhalten

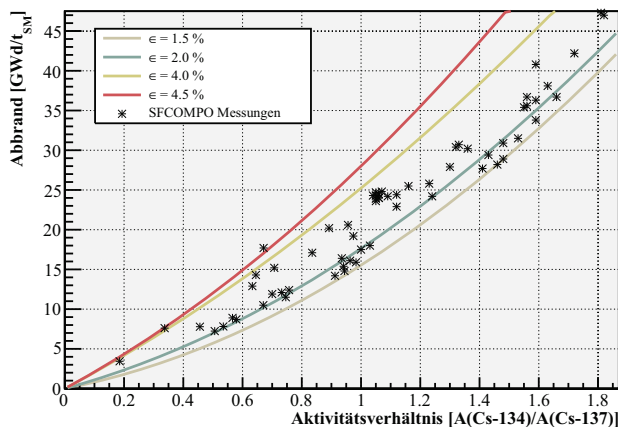


Abbildung 6.5:  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Korrelation im Vergleich mit gemessenen Nuklidverhältnissen

nicht nur reinen Urandioxid-Brennstoff, sondern auch Messergebnisse an Brennstoffpins mit Uran/Gadolinium-Mixturen. Betrachtet man die Ergebnisse der  $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ -Korrelation in Abbildung 6.6 liegen drei Messpunkte außerhalb der begrenzenden Korrelationsfunktionen. Diese Messungen entstammen der BPR-Stäben des Takahama-3-Reaktors, vgl. (Courcelle u. a., 2004). Dies zeigt, dass die betrachteten Nuklidkorrelationen nur Gültigkeit für den Brennstoff besitzen, aus welchem die Korrelationsfunktionen erzeugt wurden. Wenn die Begutachtung von BPR-Stäben oder Mischoxidbrennstoffen notwendig ist, müssen die für diese Materialien typischen Korrelationsfunktionen zusätzlich ermittelt werden. Für den Fall der hochdruckkompaktierten Abfallgebinde wird in Abschnitt 8.2 auf die geänderten Korrelationsfunktionen eingegangen.

<sup>1</sup>Spent Fuel Isotopic Composition Database (SFCOMPO)  
 Webseite: <http://www.oecd-nea.org/sfcompo/> Juli 2014

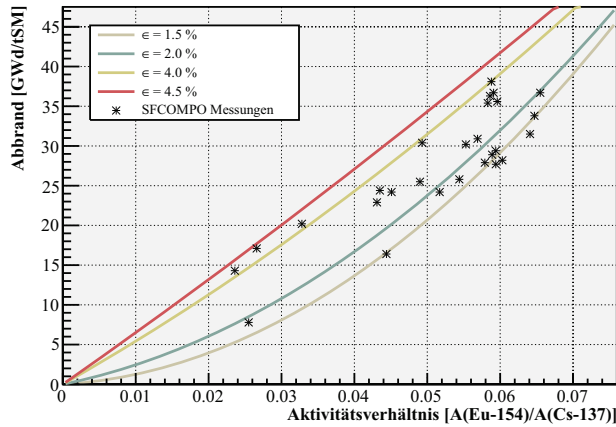


Abbildung 6.6:  $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ -Korrelation im Vergleich mit gemessenen Nuklidverhältnissen

## 6.4 Actinoide und Spaltprodukte

Um eine Bewertung der Unsicherheiten der Inventarbestimmung bei der Bewertung von hochdruck-kompaktierten Abfallgebinden vorzunehmen, wird in diesem Abschnitt, basierend auf den Ergebnissen der Untersuchung der Reaktorparameter aus Abschnitt 6.2, die Korrelationsfunktionen für Spaltprodukte und Actinoide auf ihre Schwankungsbreiten hin untersucht. Hierbei wird erneut von dem Fall ausgegangen, dass einige der Reaktorparameter nicht dokumentiert sind. Als Beispiel werden die aus der RSK-Stellungnahme (Rea, 2005) entstammenden Korrelationsfunktionen betrachtet. Wie bereits in der Einleitung erwähnt, wird die Korrelationsmethodik hauptsächlich für Nuklide angewendet, die schwierig oder auch gar nicht durch passive Messmethoden detektiert werden können (IAEA, 2007). Die Stellungnahme beschreibt, dass sowohl die Spaltprodukte, als auch die Actinoide in sogenannte Familien unterteilt sind. Die Korrelationsfunktionen der Familien sind jeweils abhängig von einem spezifischen Schlüsselnuklid. Die Aktivität des zu berechnenden Nuklids wird in Abhängigkeit des berechneten Abbrands, siehe 6.3, als auch der damit verknüpften Schlüsselnuklidaktivität bestimmt (Rea, 2005). Für ein Prüfprogramm dieser Sorte von radioaktiven Abfällen können für die Berechnung zwei unterschiedliche Ansätze gewählt werden. Zum einen lässt sich aus den abbrandabhängigen Schlüsselnuklidaktivitäten durch Kurvenanpassung eine analytische Funktion ableiten, die das Verhalten des

Nuklids beschreibt. Zum anderen werden die berechneten Schlüsselnuklidkonzentrationen in Form von Tabellen in dem Prüfprogramm hinterlegt. Der berechnete Abbrand dient in beiden Methoden als Zeiger auf die entsprechende Position der Korrelation. Für die Produktkontrolle wurden beide Methoden implementiert. Wobei problematisch war, dass sich die wenigsten Korrelationsfunktionen durch einfache Polynom-Funktionen darstellen lassen. Einige der Nuklide entstehen in Zerfallsketten oder durch wiederholte Neutroneneinfangreaktionen. Die Beschreibung dieser Vorgänge wird mittels ORIGEN gelöst. Eine Vereinfachung auf Korrelationsfunktionen stellt hierbei keine geeignete Lösung dar. Daher wird die Tabellenmethode präferiert, da durch geeignete Interpolation zwischen den berechneten Stützstellen die Nuklidkonzentration mit hinreichender Genauigkeit abgeleitet werden. Die Variation der Reaktorparameter wurde entsprechend den Angaben aus Tabelle 6.3 eingestellt.

Die Tabelle 6.8 fasst die relevanten Ergebnisse der Spaltprodukte zusammen. Die Ergebnisse stellen die Schwankungsbreite der Korrelationen für den maximal zugelassenen Abbrand von  $45 \text{ GWd}/t_{SM}$  dar, vgl. (Rea, 2005). Die Parameter Claddingtemperatur, Moderatortemperatur, Brennstofftemperatur sowie Borsäureanteil sind im Bezug auf die Korrelationen der Spaltprodukte nicht von Bedeutung. Die hauptsächlichen Parameter, die für eine Änderung des Neutronenspektrums verantwortlich sind, sind Moderatorichte, Anreicherung und spezifische Leistung. Die mittlere Schwankungsbreite liegt bei 7 %. Die höchste Schwankung tritt in der  $^{154}\text{Eu}$ -Familie auf. Dies ist hauptsächlich auf den hohen Einfangquerschnitt des  $^{154}\text{Eu}$  zurückzuführen, vgl. Abschnitt 6.3. Ein Anstieg der spezifischen Leistung bewirkt, dass der Zielabbrand, in diesem Fall  $45 \text{ GWd}/t_{SM}$ , in einer kürzeren Zeitspanne erreicht wird. Die hauptsächlichen Auswirkungen sind hierbei ein stärkerer Neutronenfluss, da die spezifische Leistung direkt mit dem Fluss korreliert ist und die Änderung durch Zerfallsprozesse, da sich die Zeiträume des Reaktorbetriebs ändern. Die mittlere Unsicherheit in Bezug auf den variierten Parameter liegt bei 11 %. Die  $^{154}\text{Eu}$ -Familie weist auch bei diesem Parameter die höchste Variabilität auf. Die anfängliche Anreicherung des Brennstoffs ist der Parameter, der die Konzentration der Spaltprodukte beeinflusst. Die Neutronik ist im hohen Maße abhängig von der Wahl der Anreicherung. Ein höher angereicherter Brennstoff bewirkt ein thermischeres Spektrum bei der Abbrandrechnung. Die mittlere Schwankungsbreite beträgt 8 %, wobei einige der Nuklidkorrelationen Variabilitäten von bis zu 40 % aufweisen können.

Die Korrelationen der Actinoide wurden auf dem selben Wege bewertet, deren Schwankungsbreiten sind in Tabelle 6.9 zusammengefasst. Es zeigt sich hier ein vergleichbares

Tabelle 6.8: Schwankungsbreite der Spaltproduktkorrelationen bei 45 GWd/t<sub>SM</sub>

| Korrelation                                  | Anreicherung | Moderatordichte | Leistung |
|--|--------------|-----------------|----------|
| <sup>108m</sup> Ag / <sup>137</sup> Cs       | 2%           | 8%              | 25%      |
| <sup>110m</sup> Ag / <sup>137</sup> Cs       | 16%          | 3%              | 23%      |
| <sup>134</sup> Cs / <sup>137</sup> Cs        | 13%          | 6%              | 7%       |
| <sup>135</sup> Cs / <sup>137</sup> Cs        | 29%          | 14%             | 16%      |
| <sup>79</sup> Se / <sup>125</sup> Sb         | 21%          | 2%              | 10%      |
| <sup>124</sup> Sb / <sup>125</sup> Sb        | 16%          | 9%              | 7%       |
| <sup>126</sup> Sn / <sup>125</sup> Sb        | 21%          | 0%              | 1%       |
| <sup>144</sup> (Ce + Pr) / <sup>154</sup> Eu | 34%          | 17%             | 6%       |
| <sup>147</sup> Pm / <sup>154</sup> Eu        | 13%          | 18%             | 10%      |
| <sup>151</sup> Sm / <sup>154</sup> Eu        | 2%           | 7%              | 12%      |
| <sup>152</sup> Eu / <sup>154</sup> Eu        | 42%          | 31%             | 33%      |
| <sup>155</sup> Eu / <sup>154</sup> Eu        | 0%           | 13%             | 5%       |
| <sup>93</sup> Zr / <sup>90</sup> (Y + Sr)    | 3%           | 1%              | 4%       |
| <sup>95</sup> Zr / <sup>90</sup> (Y + Sr)    | 35%          | 2%              | 6%       |
| <sup>94</sup> Nb / <sup>90</sup> (Y + Sr)    | 13%          | 7%              | 21%      |
| <sup>95</sup> Nb / <sup>90</sup> (Y + Sr)    | 35%          | 2%              | 6%       |
| <sup>99</sup> Tc / <sup>90</sup> (Y + Sr)    | 2%           | 1%              | 8%       |
| <sup>103</sup> Ru / <sup>106</sup> (Ru + Rh) | 11%          | 1%              | 8%       |
| <sup>107</sup> Pd / <sup>106</sup> (Ru + Rh) | 34%          | 0%              | 3%       |
| Mittelwert                                   | 18%          | 7%              | 11%      |
| Median                                       | 16%          | 6%              | 8%       |



Tabelle 6.9: Schwankungsbreite der Actinoidenkorrelationen bei 45 GWd/t<sub>SM</sub>

| Korrelation                            | Anreicherung | Moderatordichte | Leistung |
|--|--------------|-----------------|----------|
| <sup>226</sup> Ra / <sup>244</sup> Cm  | 52.0%        | 6.6%            | 46.6%    |
| <sup>231</sup> Pa / <sup>244</sup> Cm  | 84.0%        | 6.4%            | 27.4%    |
| <sup>237</sup> Np / <sup>244</sup> Cm  | 51.6%        | 1.3%            | 2.2%     |
| <sup>241</sup> Am / <sup>244</sup> Cm  | 43.0%        | 9.1%            | 7.6%     |
| <sup>242m</sup> Am / <sup>244</sup> Cm | 51.2%        | 28.3%           | 43.0%    |
| <sup>243</sup> Am / <sup>244</sup> Cm  | 40.9%        | 14.3%           | 0.8%     |
| <sup>242</sup> Cm / <sup>244</sup> Cm  | 36.6%        | 6.5%            | 16.5%    |
| <sup>245</sup> Cm / <sup>244</sup> Cm  | 3.6%         | 20.1%           | 0.5%     |
| <sup>247</sup> Cm / <sup>244</sup> Cm  | 40.9%        | 14.3%           | 0.8%     |
| <sup>248</sup> Cm / <sup>244</sup> Cm  | 55.7%        | 15.6%           | 1.0%     |
| <sup>249</sup> Cf / <sup>244</sup> Cm  | 57.1%        | 38.2%           | 1.9%     |
| <sup>251</sup> Cf / <sup>244</sup> Cm  | 67.4%        | 29.7%           | 4.4%     |
| <sup>232</sup> Th / <sup>235</sup> U   | 50.1%        | 22.8%           | 4.9%     |
| <sup>232</sup> U / <sup>235</sup> U    | 69.9%        | 2.2%            | 5.2%     |
| <sup>233</sup> U / <sup>235</sup> U    | 50.5%        | 3.5%            | 8.2%     |
| <sup>234</sup> U / <sup>235</sup> U    | 70.6%        | 3.2%            | 18.9%    |
| <sup>236</sup> U / <sup>235</sup> U    | 44.7%        | 17.1%           | 0.7%     |
| <sup>238</sup> U / <sup>235</sup> U    | 74.9%        | 17.7%           | 0.8%     |
| <sup>227</sup> Ac / <sup>239</sup> Pu  | 50.5%        | 10.4%           | 43.5%    |
| <sup>238</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu  | 8.1%         | 9.5%            | 11.3%    |
| <sup>241</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu  | 7.6%         | 7.8%            | 1.2%     |
| <sup>242</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu  | 30.6%        | 29.3%           | 0.5%     |
| <sup>244</sup> Pu / <sup>239</sup> Pu  | 51.2%        | 14.1%           | 0.7%     |
| Mittelwert                             | 47.5%        | 14.2%           | 10.8%    |
| Median                                 | 50.5%        | 14.1%           | 4.4%     |

Bild wie schon bei den Spaltprodukten. Die hauptsächlichen Schwankungen entstehen durch die Reaktorparameter Anreicherung, Moderatordichte und spezifische Leistung. Der Hauptanteil der Unsicherheiten entfällt wiederum auf die anfängliche Anreicherung, die Schwankungsbreite ist jedoch ungleich höher als bei den Spaltprodukten. Die Variation der Reaktorparameter bewirkt im Maximalfall eine Unsicherheit von näherungsweise 75 % bei der Korrelation zwischen  $^{238}\text{U}$  /  $^{235}\text{U}$ .

## 6.5 Bewertung der Korrelationsmethodik

Die Nuklidkorrelation ist ein seit Jahren etabliertes Verfahren für die Berechnung von Nuklidkonzentrationen, die nur schwer mittels passiven Methoden nachweisbar sind (Hermann u. Berndt, 1983). Die im Rahmen der Parametervariation ermittelten Schwankungsbreiten dienen dazu, die Unsicherheiten der Methode zu bewerten, für den Fall, dass nicht alle Reaktorparameter hinreichend bekannt sind. Sowohl für die Actinoide als auch die Spaltprodukte zeigte sich, dass die Parameter Anreicherung, Moderatordichte und spezifische Leistung zu den höchsten Unsicherheiten im Bezug auf die ermittelten Nuklidkonzentrationen führen. Es kann nicht davon ausgegangen werden, dass die Betriebsparameter Bestandteile der Abfalldokumentation sind. Daher müssen bei der Berechnung der Abfalleigenschaften diese Schwankungen mit berücksichtigt werden.

Die in der RSK-Stellungnahme angewendeten Korrelationsmethoden für Abbrand und Kühlzeit wurden in diesem Kapitel positiv getestet, vgl. (Rea, 2005). Ein Vergleich mit gemessenen Nuklidkonzentrationen zeigt, dass die Variation der Messwerte durch das Unsicherheitsband der Korrelationen abgedeckt wird. Für ein Prüfprogramm wurde somit gezeigt, dass die grundlegenden Funktionalitäten und Korrelationstechniken zu belastbaren Aussagen führen.

Für die Anwendung dieser Methoden müssen jedoch zusätzliche Informationen bezüglich der Prozessparameter mit in das Prüfprogramm einfließen, beispielsweise der verbleibende Anteil von Brennstoffresten an den Hülzen. Diese Einflussparameter werden im nächsten Kapitel eingehend behandelt.



## **7 Untersuchung von hochdruckkompaktierten Abfallströmen**

Der zentrale Anwendungsfall der entwickelten Softwareumgebung ist die Prognose der Eigenschaften von Abfallgebinden ausgehend von Modellannahmen und bekannten Grenzwerten. Die in Abschnitt 3.6 vorgestellten generischen Funktionalitäten des Kopplungssystems werden in diesem Kapitel angewendet, um die Erwartungswerte der radiologischen Produkteigenschaften für den hochdruckkompaktierten Abfallstrom aus der Wiederaufarbeitung abzuleiten. Abschnitt 7.1 fasst hierzu die für die Bestimmung der Produkteigenschaften relevanten Modellparameter zusammen. In den folgenden Abschnitten werden die jeweiligen Qualitätsmerkmale, basierend auf diesen Modellparametern, abgeleitet. Dieses Kapitel endet mit einer Bewertung des Ansatzes und fasst die Maßnahmen für eine Qualitätskontrolle eines solchen Abfallstroms zusammen.

### **7.1 Modellbasierte Ableitung der Eigenschaften**

Das Ziel der generischen Modellierung der Abfallströme aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen ist, den Gutachtern auf Basis von Szenariobetrachtungen Erwartungswerte für die Eigenschaften eines zu untersuchenden Abfallstroms zu generieren. Die Eigenschaften selbst sind von den gewählten Prozessparametern der Wiederaufarbeitung abhängig. Die Softwareumgebung zur Berechnung wurde bereits in Abschnitt 3.3 besprochen. Im Fall der hochdruck-kompaktierten Abfallgebinde werden die radiologischen Eigenschaften auf Basis von Untersuchungen von verbleibenden Resten aus der Wiederaufarbeitungsanlage UP-2 abgeleitet. Im Rahmen des Coquenstock-Programms wurden Proben der Hülzen- und Strukturmaterialien der wiederaufgearbeiteten Kernbrennstoffe der Reaktoren Obrigheim und Stade sowohl an eine Forschungseinrichtung der CEA als auch an das Paul-Scherer-Instituts (PSI) gesendet, vgl. (Gue u. a., 1987) und (Restani u. a.,

## KAPITEL 7. UNTERSUCHUNG VON HOCHDRUCKKOMPAKTIERTEN ABFALLSTRÖMEN

Tabelle 7.1: Ermittelte Konzentrationen der Anhaftungen und Undissolution-Rates, vgl. (Gue u. a., 1987), (Restani u. a., 1992)

| Actinoide [mg/kg]             | Obrigheim (CEA) | Stade (CEA) | Obrigheim (PSI) | Dresden (U.S.) | Rückstand [%] |
|-------------------------------|-----------------|-------------|-----------------|----------------|---------------|
| Uran                          | 1140            | 1100        | 1132            | 623            | 0,04 - 0,1    |
| Neptunium                     | 0,27            | 0,36        | k.A.            | k.A.           | 0,01 - 0,06   |
| Plutonium                     | 14,2            | 13,1        | 13,6            | 4,3            | 0,03 - 0,1    |
| Spaltprodukte [Ci/kg]         |                 |             |                 |                |               |
| $^{106}\text{Ru} + \text{Rh}$ | 0,47            | 0,47        | 0,46            | k.A.           | 0,44 - 0,55   |
| $^{134}\text{Cs}$             | 0,16            | 0,16        | 0,16            | k.A.           | 0,16 - 0,2    |
| $^{137}\text{Cs}$             | 0,57            | 0,63        | 0,54            | 0,62           | 0,17 - 0,19   |
| $^{144}\text{Ce} + \text{Pr}$ | 0,15            | 0,17        | 0,14            | k.A.           | 0,17 - 0,19   |
| $^{154}\text{Eu}$             | 0,02            | 0,02        | 0,02            | k.A.           | 0,26 - 0,27   |
| $^{90}\text{Sr}$              | 0,42            | 0,48        | k.A.            | k.A.           | 0,2 - 0,21    |
| $^3\text{H}$                  | 0,82            | 0,75        | k.A.            | k.A.           | 56,0 - 70,0   |
| Aktivierungsprodukte [Ci/kg]  |                 |             |                 |                |               |
| $^{125}\text{Sb}$             | 0,88            | 0,55        | 0,76            | k.A.           |               |
| $^{60}\text{Co}$              | 0,13            | 0,21        | 0,064           | 0,074          |               |
| $^{54}\text{Mn}$              | 0,004           | 0,005       | 0,003           | k.A.           |               |

1992). Sowohl der Anteil der anhaftenden Brennstoffrückstände als auch die Aktivierung der Materialien wurde mittels zerstörungsfreien und zerstörenden Prüftechniken ermittelt, siehe (Gue u. a., 1987). Tabelle 7.1 stellt die Ergebnisse der verschiedenen Laboratorien, sowohl für die untersuchten Rückstände von Radionukliden, als auch Reaktoren gegenüber. Die Zielabbrände der untersuchten Brennelemente liegen in der gleichen Größenordnung. Für die Strukturelemente aus dem Kernkraftwerk Obrigheim lag der mittlere Abbrand bei 30 [GWd/t<sub>SM</sub>], wohingegen der Abbrand des Brennstoffs aus dem Kernkraftwerk Stade bei 33 [GWd/t<sub>SM</sub>] lag. Der Vergleich der Untersuchungen zeigt, dass für beide Brennstoffe ein vergleichbares Verhalten im Bezug auf die anhaftenden Rückstände festzustellen ist. Die Ergebnisse beider Laboratorien und beider Brennstofftypen zeigen, dass nach fünf Jahren Kühlzeit das Antimonisotop  $^{125}\text{Sb}$  die höchste Aktivität aufweist. Dies entsteht zum einen als direktes Spaltprodukt, zum anderen als Aktivierungsprodukt des Zinnanteils der Zircaloy-4 Legierung. Die aus dieser Studie ermittelten "undissolution rates", also das Verhältnis zwischen gemessener Radionuklidkonzentration und der erwarteten Konzentration vor Auflösung des Brennstoffs, dienen als Prozessparameter für die generische Simulation der hochdruck-kompaktierten Abfallgebinde. Unter den Spaltprodukten nimmt Tritium eine Sonderrolle ein. Es entsteht bei der Spaltung in Begleitung leichter geladener Teilchen, auch als ternäre Spaltung bezeichnet. Pro Jahr entstehen in einem 900 MWe Reaktor schätzungsweise 600 TBq  $^3\text{H}$ , vgl. (Andrieu u. a., 2005). Eine Eigenschaft der Zirkoniumlegierung ist die Rückhaltefähigkeit von Tritium. Im Fall der Untersuchung der Hülsmaterialien

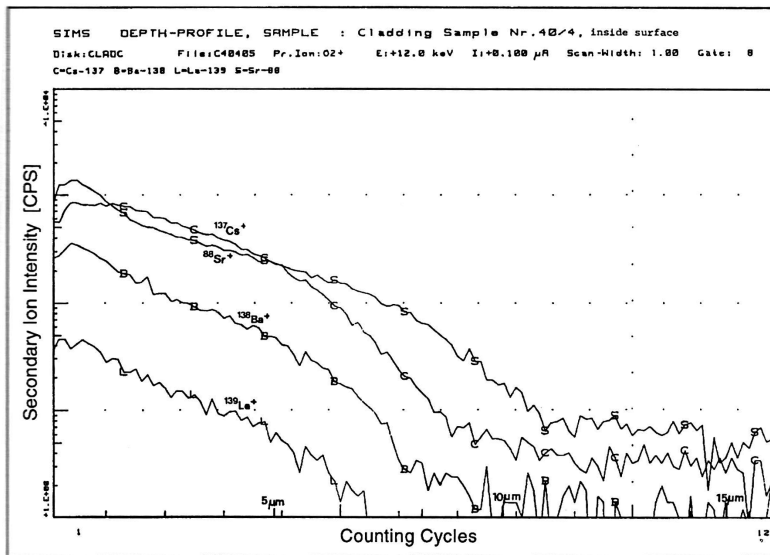


Abbildung 7.1: Tiefenprofil der Spaltproduktaktivitäten im Zircaloy Cladding (Restani u. a., 1992)

wurden Rückstände zwischen 52 bis 65 % des ursprünglich erzeugten Tritiums ermittelt. Diese Rückhaltefähigkeit von Tritium ist besonders bei der Wiederaufarbeitung und der anschließenden Zwischenlagerung von Bedeutung.

Aus den Ergebnissen der Radionuklidverteilungen zeigt sich, dass die schweren Radionuklide, wie die Actinoide, in der Oxidschicht verbleiben (Restani u. a., 1992). Durch "Secondary Ion Mass Spectrometry" (SIMS) Analysen wurde die Eindringtiefe ermittelt, siehe Abbildung 7.1. Im Vergleich zu den Actinoiden besitzen die Spaltprodukte eine deutlich höhere Eindringtiefe, welche von der Energie- und Masseverteilung der Spaltprodukte abhängig ist.

Um den Einfluss dieser Abhängigkeiten besser zu quantifizieren, wurde durch eine Monte-Carlo-Simulation die mittlere Eindringtiefe bestimmt. Als Software wurde hierzu MCNP-P/X angewendet. MCNP/P/X unterscheidet sich zu dem MCNP5, dass durch Monte-Carlo-Simulationen der Transport von Ionen berechnet werden kann. Das geometrische Modell der Simulation entspricht einem kurzen Abschnitt eines Brennstabes. Die Geometrie entstammt dem Aufbau eines Siemens Konvoi-Brennstabs (Nuc, 2004). Der Brennstoff wird mit einer Anreicherung von 4,0 Gew.-% und einer Dichte von 10,0 g/cm<sup>3</sup> angenommen.

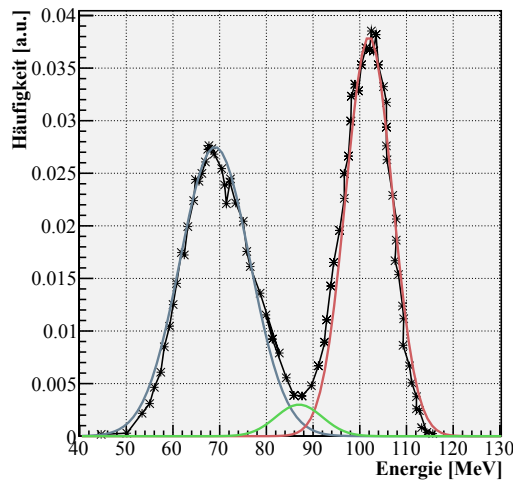


Abbildung 7.2: Energieverteilung der Spaltprodukte, vgl. (Romano u. a., 2010)

Die Dichte entspricht somit etwa 90,0 % der theoretischen Dichte von Urandioxid. Zwischen dem Brennstoffpellet und der Hüllrohrinnenwand wird ein Zwischenraum, im englischen auch als Gap bezeichnet, mit einem Radius von 0,085 cm modelliert. Dieser Zwischenraum ist mit Helium gefüllt. Die Hüllrohrinnenwand besteht in den ersten 2,0  $\mu\text{m}$  aus Zirkonoxid bei einer Dichte von 5,68  $\text{g}/\text{cm}^3$ . Ab 2,0  $\mu\text{m}$  geht das Material in Zircaloy-4 mit einer Dichte von 6,55  $\text{g}/\text{cm}^3$  über.

Für die Parametrierung der Teilchenquelle wird angenommen, dass sich die Energieverteilung der Spaltprodukte als Summe dreier Gauß-Funktionen darstellen lässt, siehe (Madland u. Nix, 1982). Bei der Spaltung muss sowohl die Energie-, als auch die Impulserhaltung gelten, daher erhalten die Nuklide aus der Gruppe der schweren Spaltprodukte eine geringere kinetische Energie. Abbildung 7.2 zeigt die gemessene Energieverteilung bei der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  mittels thermischer Neutronen, vgl. (Romano u. a., 2010). Aus den Kurvenanpassungen wurden die Parameter für die Teilchenquelle in MCNP/X abgeleitet. In einer ersten Simulationsreihe wurde ermittelt, welchen Einfluss die radiale Startposition des Spaltprodukts auf die Endringtiefe besitzt. Hierzu wurde schrittweise die radiale Startpositionen innerhalb des Brennstoffs variiert. Die Ergebnisse dieser Simulationsreihe sind in Abbildung 7.3 zusammengestellt.

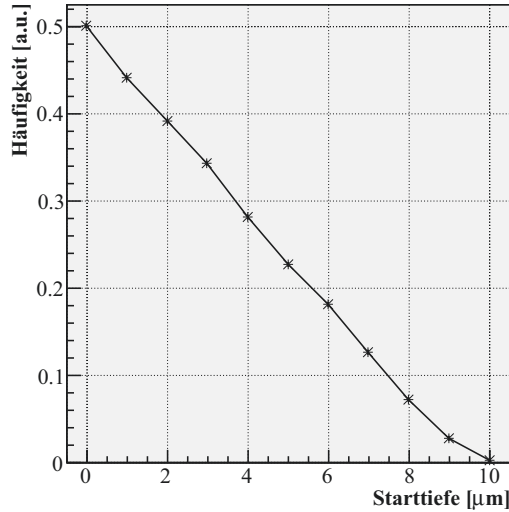


Abbildung 7.3: Darstellung der Zählhäufigkeit gegen Startposition

Liegen die Startpunkte der Spaltprodukte verteilt auf der Oberfläche des Brennstoffpellets, besteht eine Wahrscheinlichkeit von 50 %, dass die Spaltprodukte in das Hüllrohrmaterial gelangen. Mit zunehmender Tiefe der Startpositionen nimmt die Wahrscheinlichkeit, dass die Spaltprodukte die Hüllrohrwände erreichen, bedingt durch die Abbremsung innerhalb der Brennstoffmatrix ab. Bei einer Startposition  $10,0 \mu\text{m}$  entfernt von der Oberfläche des Brennstoffs liegt die Wahrscheinlichkeit die Hüllrohrwände zu erreichen bei weniger als 0,05%. Somit wird deutlich, dass hauptsächlich die Bereiche dicht an der Oberfläche des Brennstoffs von Bedeutung sind bei der Betrachtung der Eindringtiefe durch die hohen kinetischen Energien der Spaltprodukte. Dieses Verhalten ist bei hochabgebrannten Brennelementen zu beachten. Die Energieverteilung des Neutronenspektrums in einem Leichtwasserreaktor führt dazu, dass in den äußeren Bereichen eines Brennstoffpellets die epi-thermische Einfangwahrscheinlichkeit höher ist als im Mittel über das gesamte Pellet. Daher kommt es zu einem höheren lokalen Abbrand in dem äußeren Bereich des Pellets. Dieser Effekt wird auch als "Rim-Effect" bezeichnet (Matzke, 1992).

Aus den Monte-Carlo-Simulationen ermittelte sich für die zwei Spaltproduktgruppen unterschiedliche Eindringtiefen in das Hüllrohrmaterial. Die Tabelle 7.2 fasst die Ermittelten



Tabelle 7.2: Eindringwahrscheinlichkeiten von Radionukliden in die Hüllrohrmaterialien berechnet mittels MCNP/X.

| Tiefe $x$ [ $\mu\text{m}$ ] | $^{137}\text{Cs}$ $\Phi(x)$ | $^{90}\text{Sr}$ $\Phi(x)$ |
|-----------------------------|-----------------------------|----------------------------|
| 0,0                         | $5,34 \times 10^{-1}$       | $5,26 \times 10^{-1}$      |
| 2,0                         | $4,06 \times 10^{-1}$       | $4,60 \times 10^{-1}$      |
| 3,0                         | $2,67 \times 10^{-1}$       | $3,71 \times 10^{-1}$      |
| 4,0                         | $1,60 \times 10^{-1}$       | $3,04 \times 10^{-1}$      |
| 5,0                         | $6,81 \times 10^{-2}$       | $2,46 \times 10^{-1}$      |
| 6,0                         | $5,09 \times 10^{-3}$       | $1,89 \times 10^{-1}$      |
| 7,0                         | $2,83 \times 10^{-6}$       | $1,32 \times 10^{-1}$      |
| 8,0                         | $0,00 \times 10^{+0}$       | $7,42 \times 10^{-2}$      |
| 9,0                         | $0,00 \times 10^{+0}$       | $1,83 \times 10^{-2}$      |
| 10,0                        | $0,00 \times 10^{+0}$       | $5,23 \times 10^{-5}$      |
| 11,0                        | $0,00 \times 10^{+0}$       | $0,00 \times 10^{+0}$      |
| 12,0                        | $0,00 \times 10^{+0}$       | $0,00 \times 10^{+0}$      |

Eindringwahrscheinlichkeiten zusammen. Die Werte sind bezogen auf ein Startteilchen, welches an der Oberfläche eines Brennstoffpellets gestartet wurde. Die schwere Gruppe von Spaltprodukten besitzt im Mittel eine Eindringtiefe von ca.  $7 \mu\text{m}$ , wohingegen die leichte Gruppe eine Eindringtiefe von ca.  $10 \mu\text{m}$  aufweist. Diese Werte lassen sich auch im Vergleich mit den gemessenen Eindringtiefen, dargestellt in Abbildung 7.1, wiederfinden.

Die durchgeführten Berechnungen der hochdruck-kompaktierten Abfälle werden mit den Garantieparametern verglichen, die ein zukünftiges Abfallgebinde einhalten muss. Da für Deutschland die Garantieparameter zur Zeit der Drucklegung noch nicht veröffentlicht sind, wurden stellvertretend die Garantieparameter für den japanischen Abfallstrom angewendet. Ein Vergleich der japanischen Parameter mit den angegebenen Parametern aus der Veröffentlichung von Toubon et al. zeigt, dass alle diese Parameter übereinstimmend sind, vgl. (Toubon u. a., 2003). Daher wird davon ausgegangen, dass diese Parameter, insofern nicht in der RSK-Stellungnahme weitere Forderungen hinterlegt sind, mit den Garantiewerten für die deutsche Kampagne übereinstimmend sind (Rea, 2005). Mit diesem Vorgehen kann auf Basis der Abbrandrechnungen, Kopplungsparameter und Monte-Carlo-Simulationen bestimmt werden, ob die gewählten Garantieparameter konservativ für den gewählten Abfallstrom sind. Tabelle 7.3 fasst die Garantiewerte für die hochdruckkompaktierten Abfälle zusammen. Die Angaben der Dosisleistungen sind bezogen auf den Kontakt. Abgesehen von der  $\gamma$ -Dosisleistung entsprechen die Angaben dem japanischen Abfallstrom. Aufgrund

Tabelle 7.3: Zusammenfassung der Garantieparameter, mit freundlicher Genehmigung der japanischen Atomenergiesicherheitsorganisation, vgl.(NITE, 2008)

| Parameter                             | Grenzwert      |
|---------------------------------------|----------------|
| $^{137}\text{Cs}$                     | 65 TBq         |
| $^{90}(\text{Sr} + \text{Y})$         | 115 TBq        |
| $^{241}\text{Pu}$                     | 75 TBq         |
| $^{244}\text{Cm}$                     | 2 TBq          |
| $\alpha(Pu)$                          | 3,3 TBq        |
| $\alpha - \text{Gesamt}T_{1/2} > 50a$ | 4,2 TBq        |
| Thermische Leistung                   | 90 W           |
| $\gamma$ -Dosisleistung               | 30 Gy/h        |
| Neutronendosisleistung                | $10^{-4}$ Gy/h |

der RSK-Stellungnahme ist die Dosisleistung des deutschen Abfallstroms auf 30 Gy/h begrenzt (Rea, 2005).

Die Untersuchungen aus Kapitel 6 haben gezeigt, dass die Ergebnisqualität der Abbrandrechnungen im großen Maße davon abhängt, dass die Reaktorparameter hinreichend bekannt sind. Je nach Wahl der Reaktorparameter wurden Schwankungsbreiten von bis zu 80 % bezogen auf den Mittelwert der Studie festgestellt. Um dieser Unsicherheit bei der Berechnung der Produkteigenschaften Rechnung zu tragen, werden die Nuklidkonzentrationen mit einem Faktor zwei beaufschlagt. Dies dient dazu, die hervorgerufenen Unsicherheiten durch die Abbrandrechnung konservativ abzudecken. Um die Validität der Garantieparameter zu bestimmen, ist dieses Verfahren gerechtfertigt.

Für den zukünftigen Einsatz des Softwaresystems ist es jedoch ratsam in Zusammenarbeit mit den Abfallkonditionierern die mittleren Reaktorparameter so abzustimmen, dass eine Überdeklaration der Aktivitäten vermieden wird. Eine Überdeklaration führt zu Blindaktivitäten, die nur theoretisch existieren und sowohl die Kapazität eines Endlagers, als auch den Aufwand für den sicheren Transport und die Zwischenlagerung negativ beeinflussen.

## 7.2 Qualitätsmerkmale der Abfallgebinde

Die Herstellung der hochdruckkompaktierten Abfallgebinde ist ein halboffener Prozess. Halboffen bezieht sich darauf, dass zwar die Prozessparameter und die Rohabfälle festgelegt sind, in den erzeugten Abfallgebinden jedoch eine Mischung unterschiedlicher Rohabfälle

auftreten können. Die RSK-Stellungnahme macht deutlich, dass die Abfälle ausschließlich aus der Wiederaufarbeitung von Leichtwasserbrennelementen entstammen. Es ist nicht vorgegeben, dass ein Abfallgebinde ausschließlich aus einem einzelnen Rohabfallstrom produziert wird (Rea, 2005). Daher muss davon ausgegangen werden, dass ein Abfallgebinde die Hülsen- und Strukturmaterialien unterschiedlicher Brennelemente beinhaltet.

Diese Annahme führt zu dem Schluss, dass der Fall eines homogenen Abfalls aus nur einem Rohabfallstrom eher die Ausnahme darstellt. Somit kann nicht ausgeschlossen werden, dass sich die nuklearen Eigenschaften der unterschiedlichen konditionierten Abfälle deutlich unterscheiden. Die in Kapitel 6 erarbeiteten Korrelationsfunktionen werden an dieser Stelle auf ihre Vorhersagegenauigkeit des nuklearen Inventars hin untersucht, wenn eine Mixtur unterschiedlicher Rohabfälle vorliegt. Die Eigenschaften der Abfälle können sich hierbei um die anfängliche Anreicherung, Abbrand und Kühlzeit unterscheiden.

### 7.2.1 Neutronen- und Photonenspektren

Die Charakterisierung der hochdruckkompaktierten metallischen Abfälle basiert auf der passiven Gammaspektroskopie, sowie der aktiven und passiven Messung der Neutronenemission (Toubon u. a., 2003).

Um zu einer Einschätzung der messbaren Gamma- und Neutronenflüsse zu gelangen, werden durch die Kopplung von Abbrandrechnung und Transportsimulation die Einflüsse der Abfallmatrix sowie der Quellverteilung der Photonen bzw. Neutronen untersucht. Wie bereits im Abschnitt 7.1 beschrieben wurde, bestehen die hochdruckkompaktierten Abfälle hauptsächlich aus den metallischen Reststoffen der wiederaufgearbeiteten Brennelemente. Durch die hohe Dichte, bedingt durch den hohen metallischen Anteil und der erfolgten Kompaktierung, ist in der Abfallmatrix eine starke Schwächung der Gammastrahlung zu erwarten. Abgesehen von den anhaftenden Brennstoffresten besteht die Abfallmatrix aus Zircaloy, Inconel und Edelstahl. Auf Grund des geringen Einfangquerschnitts ist Zircaloy ein gutes Matrixmaterial für die Neutronenmesstechnik. Für die Gammaspektroskopie ist durch die hohe Kernladungszahl von Zirkonium eine starke Schwächung der Gamma-Strahlung zu erwarten. Abbildung 7.4 zeigt den energieabhängigen Photonen-Wechselwirkungsquerschnitt für Zirkonium.

Die für die Charakterisierung der Abfallgebinde genutzten Gamma-Linien der Schlüssel-

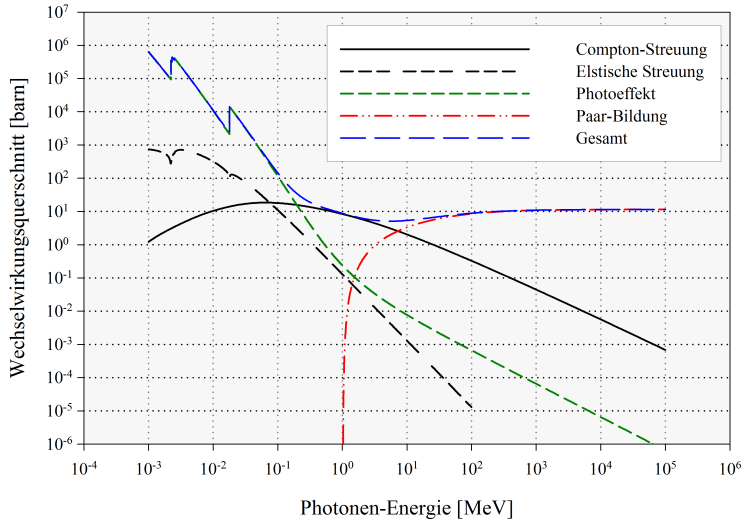


Abbildung 7.4: ENDF-VII.0 Wechselwirkungsquerschnitt für Zirkonium

nuklide liegen im Energiebereich zwischen 0,4 MeV und 2,0 MeV (Toubon u. a., 2003). In diesem Energiebereich dominiert der Compton-Effekt die Wechselwirkung zwischen der Gamma-Strahlung und der Abfallmatrix. Die Werte für die Dichte ergeben sich aus der maximalen Beladung eines Abfallgebundes. Für das Maximalgewicht von 850 kg errechnet sich die Dichte für die Abfallmatrix von  $5,2 \text{ g/cm}^3$ . Für die Ableitung des Minimalwertes wurde angenommen, dass ein Abfallgebinde minimal 70 % der Maximalmasse beinhaltet. Für diesen Wert errechnet sich die Dichte zu  $3,8 \text{ g/cm}^3$ . Für den betrachteten Energiebereich und bei einer Dichte von  $5,2 \text{ g/cm}^3$  liegt die mittlere freie Weglänge der Photonen zwischen 0,3 cm und 5,0 cm. Vergleicht man diese ermittelten Werte mit der Geometrie der Abfallmatrix so ist ersichtlich, dass bei einem Radius der Matrix von 19,0 cm eine Absorption und somit eine Abschwächung der Gamma-Strahlung sehr wahrscheinlich ist.

Ein weiterer Aspekt ist, dass auf Grund der Heterogenität der Abfallmatrix zusätzliche Abschirmeffekte auftreten können. Die aus Inconel und Edelstahl gefertigten Endstücke können willkürlich in der Abfallmatrix verteilt sein. Um die Auswirkung des Abschirmeffekts zu maximieren, wird angenommen, dass die Endstücke zentral in der Matrix eingebettet sind.

Für die Simulation kommen zwei Modelle in Betracht: Zum einen wird die Matrix als homogene Mischung aus Edelstahl und Zirkonium angenommen, im zweiten Fall ist ein Endstück aus Edelstahl zentrisch in der Abfallmatrix positioniert. Es wird in beiden Fällen die Aktivität auf 1,0 TBq  $^{60}\text{Co}$  normiert. Die Aktivitätsverteilung zwischen dem Endstück und der Zirkonium-Matrix entstammt den dreidimensional durchgeführten Abbrandrechnungen. Die Verunreinigung von  $^{59}\text{Co}$  beträgt weniger als 20 ppm bezogen auf die Masse der Hülsmaterialien, in diesem Fall Zircaloy-4 (Rudling u. a., 2007). Die Verunreinigung in den Endstücken wurde auf 1200 ppm festgelegt. Die Verunreinigungen von  $^{59}\text{Co}$  sind abhängig von der Güte der Materialien und können Werte von bis zu 2000 ppm erreichen (Neeb, 1997).

Durch den Abbrand des Kernbrennstoffs auf 45,0 GWd/ $t_{SM}$  entstehen in den Materialien durch Neutroneneinfang und  $(n,\gamma)$ -Reaktionen das  $^{60}\text{Co}$ . Es zeigt sich, dass aufgrund des deutlich höheren Flusses in der Nähe des Zentrums des Brennelements es zu einer starken Aktivierung von  $^{59}\text{Co}$  kommt. Im Vergleich zwischen der spezifischen Aktivität von  $^{60}\text{Co}$  jeweils bezogen auf ein Kilogramm der Hülsmaterialien und Endstücke, zeigt sich, dass die Aktivität von  $^{60}\text{Co}$  in den Endstücken um einen Faktor 3 größer ist, als in den Hülsmaterialien, bedingt durch den um Faktor 60 größeren Anteil an  $^{59}\text{Co}$  in der ursprünglichen Materialzusammensetzung der Endstücke. Dies ist begründet durch den Abfall der Neutronenflussverteilung zu den Rändern des Kerns hin.

Aus den ermittelten spezifischen Aktivitäten bezogen auf ein Kilogramm der unterschiedlichen Materialien wird die MCNP-Simulation so angepasst, dass die Wahrscheinlichkeit für die Emission eines  $\gamma$ -Quants aus den verschiedenen Materialzonen den konditionierten Massen entspricht. Es zeigt sich, dass für den betrachteten Abbrand von 45,0 GWd/ $t_{SM}$  und den eingestellten Verunreinigungen 30 % der  $^{60}\text{Co}$ -Aktivität auf das Endstück entfällt und die restlichen 70 % aus der Zirkonium-Matrix entstammen.

Abbildung 7.5 stellt die beiden angewendeten Modelle gegenüber. Der Photonenfluss durch die Oberfläche der Matrix wird als Vergleichswert genutzt. Für beide Modelle wurde die Dichte der Matrix zwischen 3,8 und 5,2 g/cm<sup>2</sup> variiert. Die Auswertung der Spektren stützt sich auf den Photonenfluss der 1,33 MeV Linie des  $^{60}\text{Co}$ . In Tabelle 7.4 sind die Ergebnisse der Untersuchung dargestellt.

Aus dem Verhältnis zwischen homogener Verteilung und heterogener Verteilung leitet sich ab, dass durch die Selbstabsorption der Gammastrahlung in der Abfallmatrix bei 3,8 g/cm<sup>2</sup>

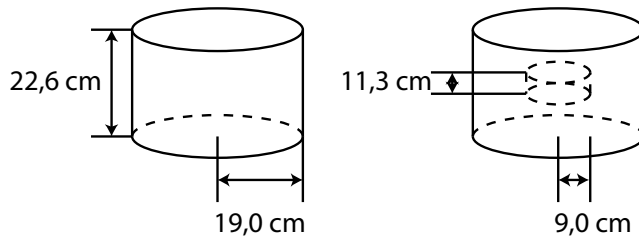


Abbildung 7.5: Geometrie der MCNP-Simulation

Tabelle 7.4: Vergleich der Photonenflüsse für den homogenen und heterogenen Fall

| Fall                               | $\phi$ [p/cm <sup>2</sup> /s] | $\sigma$ [p/cm <sup>2</sup> /s] |
|------------------------------------|-------------------------------|---------------------------------|
| Homogen 3,8 [g/cm <sup>3</sup> ]   | $8,68 \times 10^7$            | $4,77 \times 10^4$              |
| Heterogen 3,8 [g/cm <sup>3</sup> ] | $1,00 \times 10^7$            | $1,39 \times 10^4$              |
| Homogen 5,2 [g/cm <sup>3</sup> ]   | $6,69 \times 10^7$            | $4,28 \times 10^4$              |
| Heterogen 5,2 [g/cm <sup>3</sup> ] | $6,36 \times 10^6$            | $1,19 \times 10^4$              |

ein Unterschied von  $8,67 \pm 0,013$  besteht. Für die höhere Dichte von  $5,2 \text{ g/cm}^2$  steigt dieser Unterschied auf  $10,44 \pm 0,02$  an. Die Ableitung der Aktivität in der Matrix geschieht über folgenden Zusammenhang, vgl. (Toubon u. a., 2003):

$$A(N) = \frac{P(E)}{I(E) \epsilon(E) TF(E)} \quad (7.1)$$

Hierbei sind  $A(N)$  die zu ermittelnde Aktivität des Schlüsselnuklids  $N$ ,  $P(E)$  die Zählrate im Photopeak bei Energie  $E$  der charakteristischen  $\gamma$ -Linie,  $I(E)$  ist die Intensität der Emission der charakteristischen Linie,  $\epsilon(E)$  ist die intrinsische Effizienz des Detektorsystems bei Energie  $E$  und  $TF(E)$  ist eine Transferfunktion, um den Einfluss der Messgeometrie zu berücksichtigen. Ohne auf die konkrete Ausprägung der Messtechnik einzugehen, ist aus der Untersuchung ersichtlich, dass die Abfallmatrix selbst einen großen Einfluss auf die Bestimmung der Schlüsselnuklidaktivitäten besitzt. Die unterschiedliche Modellierung der Abfallmatrix muss bei der Bestimmung der  $TF$ -Funktion Berücksichtigung finden, da, wie gezeigt, durch Selbstabschirmung und Heterogenität der Abfälle deutliche Unterschiede in den Zählraten zu erwarten sind. Für die Produktkontrolle eines solchen Abfallstroms ist daher eine sorgfältige Überprüfung der Zuordnung zwischen gemessenen Zählraten und Schlüsselnuklidaktivitäten erforderlich.

Die Zirkonium-Matrix der Abfälle hat für die Charakterisierung der Abfallgebinde Vor- und Nachteile. Im Fall der passiven Messung der Spaltneutronen kommt es durch den geringen Einfangquerschnitt der Matrix zu keiner nennenswerten Schwächung des spontanen Neutronenflusses. Um die abschwächende Wirkung der Matrix auch im Bezug auf die Neutronenmesstechnik zu untersuchen, wird ein ähnliches Variationsverfahren angewendet wie schon bei der Gammaspektroskopie. Für die Emission von Neutronen aus der Spontanspaltung wird angenommen, dass  $^{244}\text{Cm}$  homogen mit einer Aktivität von  $1,0 \text{ TBq}$  in der Abfallmatrix verteilt ist. Durch das Kopplungssystem lässt sich die Quellstärke der Neutronen bestimmen. Die geforderten  $1,0 \text{ TBq}$  entsprechen einer Quellstärke von  $3,69 \times 10^6$  Neutronen pro Sekunde. Dieser Wert stimmt überein mit den aus der Literatur bekannten Werte für  $^{244}\text{Cm}$ , vgl. (Shultis u. Richard, 2007).

Die Simulationsergebnisse zeigen, dass eine Abfallmatrix aus Zirkonium den Neutronenfluss kaum abschwächt. Für eine Abfallmatrix mit einer Dichte von  $3,8 \text{ g/cm}^2$  liegt die Austrittswahrscheinlichkeit für ein Spontanspaltungsneutron bei über  $88,4 \%$ . Wird die Dichte der Abfallmatrix auf den Maximalwert von  $5,2 \text{ g/cm}^2$  erhöht, sinkt die Austrittswahrschein-

lichkeit auf 87,8 %.

Die Endstücke bewirken, dass absorbierendes Material in der Matrix vorhanden ist. Aus diesem Grund wird der Einfluss der Matrixzusammensetzung durch eine Parametervariation ermittelt. Hierbei wird die Dichte konstant auf 5,2 g/cm<sup>3</sup> gehalten, um den Effekt der Absorptionswirkung zu maximieren. Der Anteil an Edelstahl in der Abfallmatrix variiert zwischen 0 % und 100 %. Realistisch ist davon auszugehen, dass je nach Anteil der Endstücke in der Matrix, bis zu 30 % der Abfallmatrix aus Edelstahl bestehen. Eisen besitzt einen höheren Einfangquerschnitt im thermischen Bereich des Neutronenspektrums als Zirkonium.

Für die Charakterisierungsmessungen müssen zwei Fälle betrachtet werden, zum einen die passive Messmethode, in der ausschließlich die aus Spontanspaltung erzeugten Neutronen detektiert werden, zum anderen die aktive Messmethode, in der durch externe Neutronengeneratoren neue Spaltvorgänge in der Abfallmatrix induziert werden, vgl. (Toubon u. a., 2003).

Die für die Messverfahren relevanten Energiebereiche unterscheiden sich deutlich. Für die sowohl aus Spontanspaltungen als auch durch induzierte Spaltprozesse emittierten Neutronen gilt, dass diese möglichst ungehindert die Matrix verlassen sollen, um von den Detektoraufbauten registriert zu werden. Die Abfallmatrix besitzt nur eine sehr schwache Thermalisierungswirkung auf die Neutronen. Die effektive Massenzahl bei einer 10% Beimischung von Edelstahl in die Zirkoniummatrix beläuft sich auf 86,6. Dies führt dazu, dass der maximale Energieübertrag für einen elastischen Stoßprozess bei 0,045  $E_1/E_0$  liegt. Die Formel für die Berechnung der Energieverteilung bei Stoßprozessen lautet, vgl. (Knoll, 2000):

$$\frac{E_{R_{Max}}}{E_N} = \chi = \frac{4A_{eff}}{(1 + A_{eff})^2} \quad (7.2)$$

Die Anzahl der benötigten Stoßprozesse lässt sich aus der Gleichung 7.3 ableiten:

$$n \approx \frac{1}{\chi} (\ln(E_0) - E) \quad (7.3)$$

Für den Energieverlust von 2,0 MeV auf 1 eV sind in der Zirkoniummatrix mehr als 275 Stoßprozesse notwendig. Hierbei betrachtet man die Energieverteilung der Spontanspaltungsneutronen, welche durch die Watt'sche Verteilungsfunktion näherungsweise beschrie-



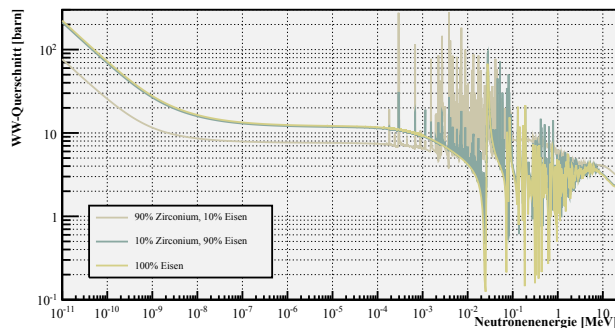


Abbildung 7.6: Aus MCNP bestimmter energieabhängiger Wechselwirkungsquerschnitt für eine Eisen/Zirkonium-Mixtur

ben werden, vgl. (Madland u. Nix, 1982)

$$\chi(E_n) = C \exp(E_n/a) \sinh\left(\sqrt{bE_n}\right) \quad (7.4)$$

Für  $^{244}\text{Cm}$  entsprechen  $a = 0.906 \text{ MeV}$  und  $b = 3.848 \text{ MeV}^{-1}$ , vgl. (Booth u. a., 2003). Mit einer wahrscheinlichen Energie im Bereich von 1,0 MeV sind die Neutronen nicht zu thermalisieren, bevor sie die Matrix verlassen. Für die Berechnungen mit unterschiedlichen Abfallzusammensetzungen ergibt sich, dass durch das schnelle Spektrum innerhalb der Abfallmatrix die Mixtur mit Eisen als Hauptbestandteil für die schnellen Neutronen transparenter ist als die reine Zirkoniummatrix. So verließen für die Eisen/Zirkaloy-Mischung mit 30 % Eisenanteil 88,4 % der Spontanspaltungsneutronen die Matrix, wohingegen für die reine Zirkonium-Matrix der Faktor mit 87,7% etwas geringer ist.

Der Grund für dieses Verhalten ist in den energieabhängigen Wechselwirkungsquerschnitten zu finden. Eisen weist im Gegensatz zum Zirkonium weniger Resonanzen im epithermischen und schnellen Bereich auf, was zu einer geringeren Reaktionswahrscheinlichkeit führt, vgl. Abbildung 7.6. Es geht somit aus der Simulationsreihe hervor, dass die passive Neutronenmesstechnik durch den Einschluss von Edelstahl in der Zirkonium-Matrix nicht negativ beeinflusst wird.

Für die aktive Messtechnik wurde ebenfalls eine Variation der Matrixzusammensetzung durchgeführt. Die MCNP-Modelle der aktiven Messtechnik wurden geringfügig modifiziert. Rings um die Abfallmatrix wird ein Graphitblock als Moderator und Reflektor simuliert.

Für die Energieverteilung der Neutronen wird angenommen, dass in einem definierten Abstand zur Abfallmatrix die Neutronen durch eine gepulste Neutronenquelle entstehen, vgl. (Raoux u. a., 2003).

Die Neutronenquelle arbeitet nach dem Beschleunigerprinzip. Hierbei werden Deuterium-Ionen durch ein externes Feld in einer evakuierten Röhre beschleunigt und treffen auf ein mit Tritium dotiertes Target. Hierbei können die Deuterium-Ionen auf Grund ihrer hohen kinetischen Energie mit den Tritium-Atomen wechselwirken.

$${}^3_1T \left( {}^2_1d, {}^1_0n \right) {}^4_2He \quad (7.5)$$

Das in dieser Reaktion entstehende Neutron besitzt eine kinetische Energie von 14,1 MeV (Knoll, 2000). Die erzeugten Neutronen werden durch die Graphitummantelung der Messzelle thermalisiert, bevor diese in die Abfallmatrix eintreten. Die thermalisierten Neutronen induzieren neue Spaltprozesse in der Abfallmatrix. Um den Effekt der Materialzusammensetzung zu untersuchen wird angenommen, dass jeweils 10 ppm eines spaltbaren Nuklids homogen in der Abfallmatrix verteilt sind. Als Referenzfall wird ein Anteil von 10 Gew.-% an Eisen in der Abfallmatrix festgelegt. Aus der Materialzusammensetzung und dem vorliegenden Neutronenfluss wird die Spaltrate bezogen auf ein Startneutron abgeleitet. Die Ergebnisse der Simulationsreihe sind in Tabelle 7.5 zusammengefasst.

Tabelle 7.5: Vergleich des Neutronenfluss für den homogenen und heterogenen Fall

| 10 % Eisenanteil  | R [cm <sup>-3</sup> ]     | σ [cm <sup>-3</sup> ]     |
|-------------------|---------------------------|---------------------------|
| <sup>235</sup> U  | 7, 21 × 10 <sup>-10</sup> | 3, 60 × 10 <sup>-12</sup> |
| <sup>238</sup> U  | 2, 46 × 10 <sup>-12</sup> | 2, 22 × 10 <sup>-14</sup> |
| <sup>239</sup> Pu | 1, 50 × 10 <sup>-9</sup>  | 2, 85 × 10 <sup>-12</sup> |
| <sup>241</sup> Pu | 1, 64 × 10 <sup>-9</sup>  | 3, 11 × 10 <sup>-12</sup> |
| 90 % Eisenanteil  | R [cm <sup>-3</sup> ]     | σ [cm <sup>-3</sup> ]     |
| <sup>235</sup> U  | 2, 41 × 10 <sup>-10</sup> | 2, 89 × 10 <sup>-13</sup> |
| <sup>238</sup> U  | 2, 29 × 10 <sup>-12</sup> | 2, 06 × 10 <sup>-14</sup> |
| <sup>239</sup> Pu | 4, 83 × 10 <sup>-10</sup> | 8, 21 × 10 <sup>-13</sup> |
| <sup>241</sup> Pu | 5, 49 × 10 <sup>-10</sup> | 7, 14 × 10 <sup>-13</sup> |

Insgesamt zeigt sich bei der Auswertung der Simulationsreihe der gleiche Trend. Die Präsenz von Eisen in der Abfallmatrix bewirkt eine Reduktion der Spaltrate bei gleichbleibender Spaltstoffkonzentration. Eisen besitzt im niederenergetischen Bereich des Neutronenspektrums einen höheren Einfangquerschnitt als Zirkonium. Daher werden für die Spaltung

notwendigen thermischen Neutronen wesentlich häufiger abgefangen, bevor diese Spaltreaktionen auslösen können, vgl. Abbildung 7.6.

Diese Simulationsreihe hat gezeigt, dass die aktive Neutronenmessung sensitiv auf die Präsenz von Eisen in der Abfallmatrix reagiert. Abgesehen von  $^{238}\text{U}$ , welches auf Grund seines geringen Spaltquerschnitts im thermischen Bereich, eine geringere Sensitivität auf das thermische Spektrum aufweist, liegt im Mittel eine Verringerung der Spaltraten auf 33 % verglichen mit dem Referenzfall vor.

Diese Simulation macht deutlich, dass die aktiven Neutronenmessverfahren negativ durch den Einschluss von Eisen in der Abfallmatrix beeinflusst werden. Für die Produktkontrolle von hochdruckkompaktierten metallischen Abfallgebinden muss geprüft werden, welcher Parameterbereich für den Anteil an Edelstahl in der Abfallmatrix zulässig ist und ob dieser Wert bei der Herstellung der Gebinde eingehalten wird.

### 7.2.2 Kritikalitätssicherheit

Nach Auflösung der Brennstoffmatrix bleibt ein geringer Anteil von spaltbaren Stoffen als Anhaftungen an den Claddingmaterialien zurück. Der Hauptteil der Anhaftungen besteht aus dem nicht thermisch spaltbaren  $^{238}\text{U}$ , aber auch  $^{235}\text{U}$  und  $^{239}\text{Pu}$ . Daher ist die Betrachtung der Kritikalitätssicherheit der hochdruckkompaktierten Abfälle notwendig.

Um die Kritikalität der Abfallgebinde konservativ abzuschätzen, wird angenommen, dass die Menge an verarbeiteten Hülsen und Strukturmaterialien 50 % der maximal zulässigen Füllmasse entspricht. Dies bewirkt, dass die Abfallmatrix etwa 50 % Hohlraumvolumen aufweist. Diese Leerräume werden im Störfallszenario vollständig mit Wasser als Moderator geflutet. Um das Kritikalitätsrisiko weiterhin zu maximieren, wird ebenfalls angenommen, dass die Hüllrohrmaterialien und Moderator homogen durchmischt sind. Ein Kritikalitätswert von  $k_{eff} = 0,95$  wird im Störfallszenario als kritikalitätssicher eingestuft, vgl. (Heinricke, 1998). Um abzuschätzen, ob ein hochdruckkompaktiertes Abfallgebinde kritikalitätssicher ist, wird die Masse bestimmt, bei der die Kritikalität den Wert  $k_{eff} = 0,95$  übersteigt.

Diese Abschätzung wird für unterschiedliche Füllhöhen wiederholt. Hierbei wird das Abfallgebinde in zwei Zonen unterteilt, die untere beinhaltet die Claddingmaterialien, Moderator, sowie das spaltbare Material, die obere nur Cladding und Moderator, siehe Abbildung 7.7. Diese geometrische Aufteilung wird sowohl für  $^{235}\text{U}$  als auch für  $^{239}\text{Pu}$  genutzt, um un-

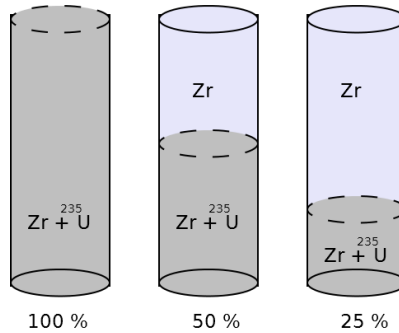


Abbildung 7.7: Geometrische Modelle für die Kritikalitätsbestimmung

abhängig die Massen zu bestimmen. Für das Modell wird weiterhin angenommen, dass die Abfallgebinde in einer hexagonalen Anordnung stehen, um die Abstände zwischen den einzelnen Gebinden zu minimieren. Auf den Grenzen des Modells werden gespiegelte Randbedingungen angewendet, wodurch nicht  $k_{eff}$  sondern  $k_{inf}$  bestimmt wird. Abbildung 7.8 zeigt das Ergebnis der Parametervariation. Die Konzentration des spaltbaren Materials ist maßgeblich für die Kritikalitätssicherheit. Wird die Füllhöhe von 100 % auf 50 % reduziert, nimmt auch die benötigte Menge an spaltbarem Material ab, um eine Kritikalität von 0,95 zu erreichen. Dies liegt darin begründet, dass die Konzentration des spaltbaren Materials gleich bleibt, jedoch die Moderationswirkung erhöht ist. Sowohl für  $^{235}\text{U}$ , als auch  $^{239}\text{Pu}$  liegt ein Minimum zwischen 20,0 und 25,0 % vor. Wird die Füllhöhe aus diesem Minimum weiter reduziert, steigt die benötigte Menge an spaltbarem Material wieder an. Dies lässt sich damit erklären, dass die Spontanspaltungsneutronen zu schnell aus der spaltbaren Zone diffundieren, bevor diese weitere Spaltungen induzieren können.

Zusammengefasst bedeutet dies für die hochdruckkompaktierten Abfallgebinde, dass im Störfallszenario konservativ weniger als 400,0 gram  $^{239}\text{Pu}$  oder 780,0 gram  $^{235}\text{U}$  im Gebinde enthalten sein dürfen, um auch unter diesen Bedingungen kritikalitätssicher zu sein. Vergleich man diese Zahlen mit den typischen Werten für die Abfallgebinde, so ist ersichtlich, dass der maximal zulässige Wert um den Faktor 50 unterschritten wird. Hierbei sind zusätzliche Effekte, die durch Neutronengifte oder parasitäre Neutroneneinfänge im  $^{240}\text{Pu}$  entstehen, nicht berücksichtigt. Daraus wird gefolgert, dass die Gebinde mit den derzeit gültigen Prozess- und Garantieparameters kritikalitätssicher sind.

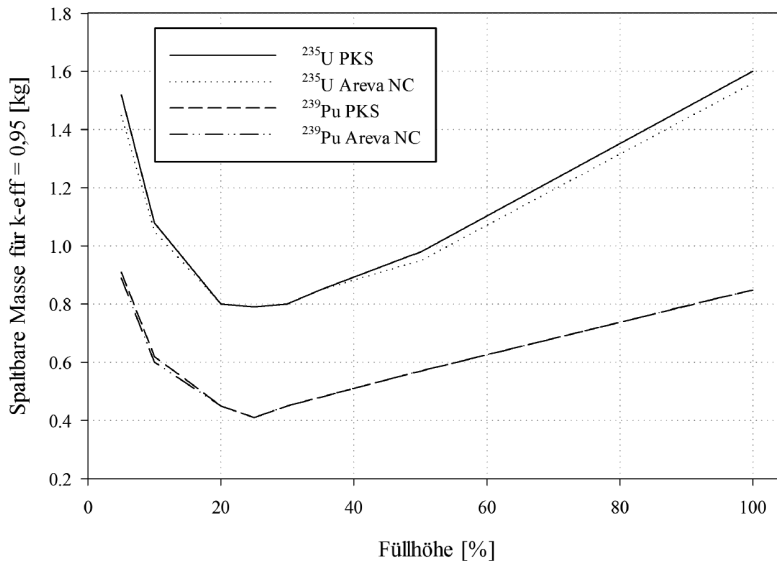


Abbildung 7.8: Kritikalität in Abhängigkeit der Füllhöhe, vgl. Schneider u. a. (2011)

## 7.2.3 Nuklidinventar

In diesem Abschnitt werden die erwarteten radiologischen Eigenschaften der hochdruck-kompaktierten Abfälle durch numerische Simulationen bestimmt. Zentrale Komponente für die Berechnung der Eigenschaften ist die in Kapitel 3 vorgestellte Kopplungssoftware. Die Vorgehensweise ist, dass aus den Ergebnissen von Abbrandrechnungen die relevanten Informationen an die Kopplungssoftware übergeben werden, welche im Anschluss die Produktparameter in Abhängigkeit der Prozessparameter bestimmt. Sind die Eigenschaften des Abfalls direkt aus dem Nuklidinventar ableitbar, wird die Information tabellarisch gespeichert. Anderenfalls wird ein Modell erzeugt, welches für die Berechnung der Neutronen- bzw. Gammadosisleistung durch MCNP verwendet wird.

Als Ausgangsbasis dient das dreidimensionale Modell eines Siemens 16x16 Druckwasserreaktorbrennelements, siehe (Nuc, 2004). Um sowohl die Aktivierungsprodukte in den Hüllrohrmaterialien, als auch in den Endstücken realistisch zu simulieren, wurde das gesamte Brennelement inklusive der Endstücke modelliert. Das Element ist hierbei in unterschiedliche axiale Zonen unterteilt, um den Effekt der inhomogenen Flussverteilung zu berücksichtigen. Für beide Endstücke war aus der Dokumentation die Gesamtmasse bekannt, jedoch

die genauen Abmaße nicht dokumentiert. Daher musste als konservatives Mittel die Geometrie der Endstücke homogenisiert werden. Die Dichte des Materials und die Menge an Moderator wurden an diese Geometrie angepasst. Die transversalen Begrenzungsflächen des Modells sind gespiegelt, wodurch das Modell einem unendlich ausgedehnten Systems entspricht. Lediglich die axialen Begrenzungsflächen weisen Verlustterme auf, um die Inhomogenität der Flussverteilung zu modellieren.

Die Eigenschaften des Brennstoffs sind vergleichbar mit denen aus Kapitel 5. Für den Basisfall wird ein Urandioxidbrennstoff mit 4,0 % Anreicherung genutzt. Die Abbrandrechnung erfolgt mittels SCALE/TRITON, vgl. Abschnitt 3.2.1. Die Ergebnisse der Abbrandrechnung werden in den FT71-Binärdateien gespeichert.

Der Hauptschritt bei der Berechnung der Abfalleigenschaften liegt in der Anwendung des in Kapitel 3 vorgestellten Programms. Die Funktionsweise entspricht von ihrem Konzept her der schrittweisen Abfolge aller relevanten Tätigkeiten während der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen. Die Prozessparameter wurden entsprechend Abschnitt 7.1 angepasst. Hierbei sind vor allem die verbleibenden Anhaftungen des Brennstoffs an den aktivierten Hülsenresten relevant. Wie in Kapitel 6 gezeigt, sind die Ergebnisse der Abbrandrechnungen stark von den gewählten Reaktorparametern abhängig. Einige der Actinoide weisen bis zu 84 % Unsicherheiten in Bezug auf die Variation der Parameter auf.

Die in dieser Arbeit genutzten Grundparameter entstammen vornehmlich aus den Benchmarkergebnissen der OECD/NEA (Barreau, 2006). Es muss jedoch davon ausgegangen werden, dass diese Parameter fehlerbehaftet sind. Daher wird für die konservative Bestimmung des Nuklidinventars festgelegt, dass zum einen die Maximalwerte der Verbleibraten aus Tabelle 7.1 angewendet werden. Des Weiteren werden diese Verbleibraten durch die Unsicherheiten der Abbrandrechnungen mit dem Faktor zwei beaufschlagt. Dies führt zu einer deutlichen Überschätzung des Nuklidinventars. Jedoch sollen diese Werte mit den Garantieparametern des hochdruckkompaktierten Abfallstroms verglichen werden, um zu beurteilen, ob die Grenzwerte generell valide sind.

Die dreidimensionalen Modelle der Brennelemente ermöglichen es sowohl die Mengen des verbleibenden Brennstoffs als auch der Strukturmaterialien realistisch abzubilden. Für den betrachteten Abfallstrom ergab sich, dass die Verarbeitung von  $1,5 t_{SM}$  gerade die Abfallmengen produziert, um ein konditioniertes, hochdruckkompaktiertes Abfallgebinde zu erzeugen. Um die Grenzwerte der Abfälle zu beurteilen, wird ausschließlich der maximal zulässige Abbrand von  $45,0 \text{ GWd}/t_{SM}$  genutzt. Die Software bietet darüber hinaus noch die Möglichkeit, die Menge von Endstücken und Hülsenmaterialien variabel einzustellen.

Im Sinne der Vergleichbarkeit wurden jedoch die aus der Geometrie der Brennelemente vorliegenden Mengenverhältnisse der Strukturmaterialien verwendet.

Für die Urantioxidbrennstoffe wurde angenommen, dass diese erst frühestens nach drei Jahren der Wiederaufarbeitung zugeführt werden. Tabelle 7.6 zeigt die Ergebnisse der berechneten Schlüsselnuklidaktivitäten und der thermischen Leistung in Abhängigkeit der Kühlzeit vor Wiederaufarbeitung des Brennstoffs.

Tabelle 7.6: Erwartete Produkteigenschaften des hochdruckkompaktierten Abfallstroms bei 45 GWd/t<sub>SM</sub>

| Parameter              | Garantiewert | 3 a   | 5 a   | 8 a   | 12 a  | 16 a  | 20 a |
|------------------------|--------------|-------|-------|-------|-------|-------|------|
| <sup>137</sup> Cs      | 65 TBq       | 38,1  | 36,4  | 34,0  | 31,0  | 28,3  | 25,8 |
| <sup>90</sup> (Sr + Y) | 115 TBq      | 54,4  | 51,9  | 48,3  | 43,8  | 39,8  | 36,2 |
| <sup>241</sup> Pu      | 75 TBq       | 15,6  | 14,2  | 12,2  | 10,1  | 8,3   | 6,8  |
| Pu-gesamt              | 3,3 TBq      | 0,41  | 0,38  | 0,34  | 0,29  | 0,25  | 0,21 |
| <sup>244</sup> Cm      | 2 TBq        | 0,60  | 0,59  | 0,58  | 0,56  | 0,55  | 0,54 |
| Alpha > 50a            | 4,2 TBq      | 1,15  | 1,10  | 1,10  | 1,09  | 1,09  | 1,09 |
| TP                     | 90 W         | 51,92 | 33,30 | 22,37 | 15,74 | 12,14 | 9,91 |

Sowohl <sup>137</sup>Cs als auch die Nuklide <sup>90</sup>(Sr + Y) sind die dominierenden Schlüsselnuklide. Selbst nach einer sehr kurzen Kühlzeit von drei Jahren liegen alle berechneten Werte unterhalb den einzuhaltenden Grenzwerte. Nach drei Jahren liegt das um den Sicherheitsfaktor erhöhte Inventar von <sup>137</sup>Cs und <sup>90</sup>(Sr + Y) 40 % unterhalb der Grenzwerte. Plutonium und Curium liegen zwischen 50 % und 80 % unterhalb der Grenzwerte.

Es zeigt sich, dass die Grenzwerte des Abfallstroms zwischen Faktor zwei und Faktor drei höher sind, als die aus den Abbrandrechnungen erwarteten Produkteigenschaften.

## 8 Mögliche Erweiterung der BMU-Freigabe

Die bisherigen Untersuchungen der hochdruckkompaktierten Abfallgebinde dienen der Bewilligung (Approval) der Eigenschaften des Abfallstroms durch das Bundesumweltministerium. Für die Akzeptanz des Abfallgebundes in der Stellungnahme der Reaktorsicherheitskommission werden Einschränkungen in den Produkteigenschaften festgelegt (Rea, 2005). Da zum jetzigen Zeitpunkt, Mitte 2014, kein konkreter Transporttermin für die Rückführung der hochdruckkompaktierten Abfälle aus der Wiederaufarbeitungsanlage in La Hague feststeht, wird in diesem Kapitel eine hypothetische Erweiterung der Freigabe des Bundesumweltministeriums besprochen. Ziel ist es für den Fall, dass bis zum Zeitpunkt der Rücklieferung doch eine Freigabe des Abfallstroms angepasst werden sollte, Erwartungswerte für die Produktkontrolle der geänderten Produktspezifikationen zu erarbeiten.

Die Stellungnahme der Reaktorsicherheitskommission schränkt den ursprünglich von Areva vorgeschlagenen Abfallstrom in drei Bereichen ein:

1. Mittlerer Abbrand des Brennelements  $\leq 45,0 \text{ GWd}/t_{SM}$
2. Keine konditionierten Strukturelemente von Mischoxidbrennstoffen
3. Keine Strukturmaterialien basierend auf Zirkonium-Niob-Legierungen

In den folgenden Abschnitten werden die drei Einschränkungen separat betrachtet und wenn möglich eine Einschätzung abgegeben, wie sich die Produktspezifikation der Abfallgebinde ändern müssten, um den erweiterten Parameterraum abzudecken. Als Referenz dient ein hochdruckkompaktiertes Gebinde, welches mit den derzeit gültigen Grenzwerten modelliert wurde. Die Abfallgebinde aus dem möglicherweise erweiterten Parameterraum werden mit diesem Modell verglichen.



## 8.1 Hochabbrand

Die bisherige Akzeptanz des Bundesumweltministeriums basiert auf der RSK-Stellungnahme zu den Produkteigenschaften der hochdruckkompaktierten Abfälle. Hierin ist der maximal zulässige mittlere Abbrand der verarbeiteten Kernbrennstoffe auf  $45 \text{ GWd}/t_{SM}$  festgelegt. Wie bereits in Kapitel 5 angesprochen wurde, ist der Trend zu höheren Abbränden zu beobachten. Viele Brennelementdesigns sind auf mittlere Abbrände von bis zu  $60\text{--}65 \text{ GWd}/t_{SM}$  ausgelegt.

Dieser Abschnitt fasst die Änderungen zusammen, die sich bei den Produkteigenschaften des hochdruckkompaktierten Abfallstroms ergeben würden. Bereits in den einleitenden Kapiteln wurde auf den Fakt hingewiesen, dass mit zunehmendem Abbrand der Aufbau der Minoren Actinoiden überproportional zunimmt. Die höheren Abbrände bedingen auch eine höhere Konzentration von Spaltprodukten im abgebrannten Brennstoff. Diese Punkte wirken sich sowohl auf die thermische Leistung als auch auf die Menge an langlebigen Alpha-Emitter aus. Die Tabelle 8.1 fasst die ermittelten Produkteigenschaften für einen Abbrand von  $65 \text{ GWd}/t_{SM}$  und unterschiedlichen Kühlzeiten zusammen. Als Referenzwerte dienen die ermittelten Eigenschaften für ein Abfallgebinde mit einem Abbrand von  $45 \text{ GWd}/t_{SM}$  und einer Kühlzeit von drei Jahren.

Tabelle 8.1: Erwartete Produkteigenschaften des hochdruckkompaktierten Abfallstroms bei  $65 \text{ GWd}/t_{SM}$

| Parameter                     | Garantiewert | Referenz | 3 a  | 5 a  | 8 a  | 12 a | 16 a | 20 a |
|-------------------------------|--------------|----------|------|------|------|------|------|------|
| $^{137}\text{Cs}$             | 65 TBq       | 38,1     | 53,5 | 51,1 | 47,7 | 43,5 | 39,7 | 36,2 |
| $^{90}(\text{Sr} + \text{Y})$ | 115 TBq      | 54,4     | 68,8 | 65,6 | 61,0 | 55,4 | 50,3 | 45,7 |
| $^{241}\text{Pu}$             | 75 TBq       | 15,6     | 19,0 | 17,2 | 14,9 | 12,3 | 10,1 | 8,3  |
| Pu-gesamt                     | 3,3 TBq      | 0,41     | 1,1  | 1,1  | 1,1  | 1,1  | 1,0  | 1,0  |
| $^{244}\text{Cm}$             | 2 TBq        | 0,60     | 1,7  | 1,6  | 1,4  | 1,2  | 1,0  | 0,9  |
| Alpha > 50a                   | 4,2 TBq      | 1,15     | 3,1  | 2,9  | 2,7  | 2,6  | 2,4  | 2,3  |
| TP                            | 90 W         | 51,92    | 74,9 | 49,1 | 33,0 | 23,0 | 17,7 | 14,4 |

Die hochabgebrannten Brennstoffe weisen eine höhere Konzentration von Spaltprodukten auf. Die Aktivität von  $^{137}\text{Cs}$  ist, wie auch der Abbrand, um den Faktor 1,4 höher als bei der Referenz. Wie bereits bei den Korrelationsrechnungen gezeigt, ist der Anteil an  $^{137}\text{Cs}$  linear korreliert mit dem Abbrand. Da mit zunehmenden Abbrand mehr Spaltungen aus dem Plutonium anstatt des Urans entstammen, steigt die Aktivität von  $^{90}(\text{Sr} + \text{Y})$  unterproportional an. Dieses Verhalten ist auf die Verschiebung der Doppelhöckerkurve

zurückzuführen, siehe Abschnitt 2.3. Die Erhöhung des Abbrands bedingt ein überproportionalen Anstieg der Minoren Actinoiden. So steigt die Aktivität von  $^{244}\text{Cm}$  um den Faktor 2,8 im Vergleich mit der Referenz. Alle hier betrachteten Schlüsselnuklidaktivitäten liegen aber unterhalb der Garantieparameter für die freigegebenen Abfallgebindedaten. Wie schon bei den eingangs besprochenen Produkteigenschaften bei 45 GWd/t<sub>SM</sub>, wurden auch im Fall des Hochabbrands die Konzentrationen der anhaftenden Rückstände um den Faktor zwei erhöht, um die Unsicherheiten der Abbrandrechnungen einzubeziehen. Trotz der deutlichen Überschätzung der ermittelten Aktivitäten werden die Grenzwerte nicht überschritten. Dies deutet erneut auf die sehr konservative Wahl der Grenzwerte hin.

Ein Aspekt der bei der Begutachtung von hochabgebrannten Kernbrennstoffen beachtet werden muss, sind die genutzten Korrelationsfunktionen. In Abschnitt 6.3 wurde bereits das nichtlineare Verhalten von  $^{154}\text{Eu}$  angesprochen. Da dieses Schlüsselnuklid durch die Abschirmung des  $^{154}\text{Sm}$  kein direktes Spaltprodukt ist und zudem einen hohen Neutroneneinfangquerschnitt aufweist, ist die Konzentration nicht proportional zum erzielten Abbrand. Dies hat zur Folge, dass die Korrelationen basierend auf  $^{154}\text{Eu}$  bei sehr hohen Abbränden ihre Eindeutigkeit verlieren. Abbildung 8.1 zeigt zwei Korrelationsfunktionen für den Abbrand, sowohl für  $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$  als auch für  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ .

Die  $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$  Korrelation kann in drei Bereiche eingeteilt werden. Zu Beginn der Standzeit im Reaktor baut sich  $^{154}\text{Eu}$  im gleichen Maße auf wie  $^{137}\text{Cs}$ , jedoch in geringeren Mengen, wie es durch die Werte auf der Abszisse des Plots deutlich wird. Dieser lineare Fall reicht je nach anfänglicher Anreicherung bis 20-25 GWd/t<sub>SM</sub>. Mit steigendem Abbrand nimmt die Bildungsrate von  $^{154}\text{Eu}$  ab. Durch die Neutroneneinfangreaktionen wird zunehmend  $^{155}\text{Eu}$  erzeugt. Dieser Bereich endet etwa zwischen 35 und 50 GWd/t<sub>SM</sub>. Betrachtet man den Fall des Hochabbrands über 50 GWd/t<sub>SM</sub> ist ersichtlich, dass die Menge an  $^{154}\text{Eu}$  gegen einen Grenzwert tendiert. Daher wird die Korrelation von Abbildung 8.1 steiler im Bereich des Hochabbrands und es ist nicht gesichert, dass diese Korrelation eindeutige Aussagen über den Abbrand zulässt. Im Falle der "ultra"-hohen Abbrände verringert sich die Konzentration von  $^{154}\text{Eu}$  durch den fortwährenden Neutroneneinfang (Caruso u. a., 2007). Für den Fall der Konditionierung von hochabgebrannten Kernbrennstoffen muss daher darauf geachtet werden, dass die Korrelationsfunktionen zur Bestimmung des nicht direkt messbaren Nuklidinventars weiterhin Gültigkeit besitzen. Eine mögliche Korrelationsfunktion, die bereits häufig Anwendung findet, ist  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ . Diese weist über den gesamten Abbrandverlauf ein durchgängig gleiches Verhalten auf. Auch hier ist ein Nachteil zu beachten, aufgrund der kurzen Halbwertszeit von  $^{134}\text{Cs}$  kann es, wie bereits im Kapitel 6

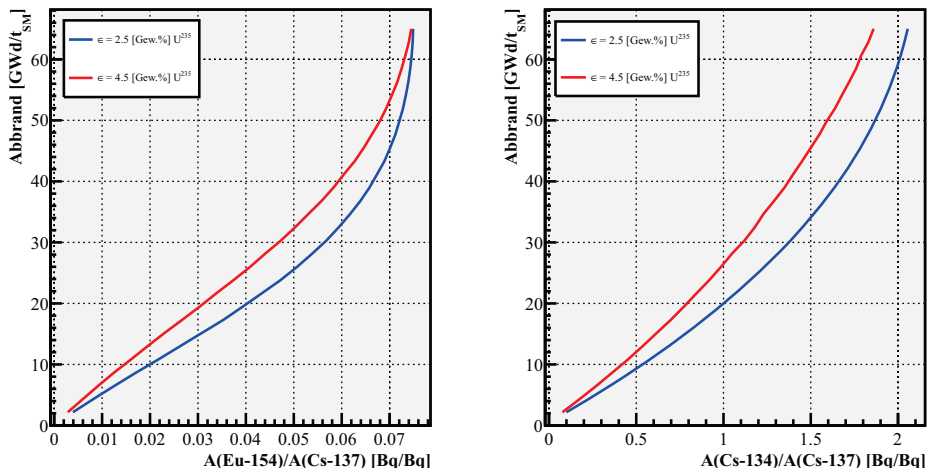


Abbildung 8.1: Vergleich der Korrelationsfunktionen für den Hochabbbrand

besprochen, bei langen Kühlzeiten zu dem Problem kommen, dass  $^{134}\text{Cs}$  als Schlüsselnuklid nicht mehr messbar ist oder nahe der Detektionsgrenze liegt.

## 8.2 Mischoxidbrennstoffe

Die Mischoxidbrennstoffe beinhalten je nach Anreicherungsgrad und gefordertem Zielabbbrand eine variable Menge an Plutonium. Der Isotopenvektor des Plutoniums hängt ebenfalls von dem Abbrand des ursprünglichen Kernbrennstoffs ab. Da eine vollständige Untersuchung aller möglichen MOX-Zusammensetzungen nicht zielführend wäre, werden in diesem Abschnitt drei verschiedene Beladungen besprochen. Die Bezeichnung der Mischoxidbrennstoffe beinhaltet sowohl den Zielabbbrand des ursprünglichen Urandioxidbrennstoffs als auch den Maximalabbbrand, für den der Mischoxidbrennstoff ausgelegt ist. Im Falle des MOX45/50 bedeutet dies ein Urandioxidbrennstoff mit einem Zielabbbrand von 45 GWd/ $t_{\text{SM}}$ , als Mischoxidbrennstoff aufgearbeitet für den Zielabbbrand 50 GWd/ $t_{\text{SM}}$ . Die Tabelle 8.2 fasst die Konzentrationen und Plutoniumvektoren zusammen. Um die Eigenschaften der hochdruckkompaktierten Abfälle abzuleiten, wird wie in Abschnitt 7.1 vorgegangen. Da bisher keine öffentlichen Daten zu dem Auflösungsverhalten von Mischoxid-

Tabelle 8.2: Zusammensetzung MOX-Brennstoffe in Gewichtsanteile

| Zusammensetzung   | MOX45/50              | MOX65/50              | MOX65/65              |
|-------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| $^{16}\text{O}$   | $1,18 \times 10^{-1}$ | $1,18 \times 10^{-1}$ | $1,18 \times 10^{-1}$ |
| $^{238}\text{Pu}$ | $8,87 \times 10^{-4}$ | $2,16 \times 10^{-3}$ | $2,34 \times 10^{-3}$ |
| $^{239}\text{Pu}$ | $2,13 \times 10^{-2}$ | $2,34 \times 10^{-2}$ | $2,53 \times 10^{-2}$ |
| $^{240}\text{Pu}$ | $9,95 \times 10^{-3}$ | $1,44 \times 10^{-2}$ | $1,55 \times 10^{-2}$ |
| $^{241}\text{Pu}$ | $5,39 \times 10^{-3}$ | $7,39 \times 10^{-3}$ | $8,01 \times 10^{-3}$ |
| $^{242}\text{Pu}$ | $2,44 \times 10^{-3}$ | $6,00 \times 10^{-3}$ | $6,50 \times 10^{-3}$ |
| $^{244}\text{Pu}$ | $7,32 \times 10^{-8}$ | $3,37 \times 10^{-7}$ | $3,65 \times 10^{-7}$ |
| $^{234}\text{U}$  | $4,14 \times 10^{-5}$ | $4,07 \times 10^{-5}$ | $4,05 \times 10^{-5}$ |
| $^{235}\text{U}$  | $5,98 \times 10^{-3}$ | $5,89 \times 10^{-3}$ | $5,86 \times 10^{-3}$ |
| $^{238}\text{U}$  | $8,36 \times 10^{-1}$ | $8,22 \times 10^{-1}$ | $8,18 \times 10^{-1}$ |

brennstoffen vorliegen, wird davon ausgegangen, dass sich die "undissolution rates" in derselben Größenordnung befinden wie für den Urandioxidbrennstoff. Es konnte gezeigt werden, dass die Implantierung der Spaltprodukte in den Hülsmaterialien auf die hohen Rückstoßenergien während des Spaltvorgangs zurückzuführen sind, vgl. Abschnitt 7.1. Werden nun mehr Spaltungen im Plutonium als in dem Uran ausgelöst, verschiebt sich das Nuklidspektrum der Spaltprodukte aufgrund der unterschiedlichen Doppelhöckerkurven. Die grundlegenden Eigenschaften für den Implantierungsprozess bleiben bestehen. Tabelle 8.3 zeigt die ermittelten Produkteigenschaften der Abfallgebinde mit Mischoxidbeladung. Als Referenzwert dienen die ermittelten Produkteigenschaften eines Abfallgebundes mit Strukturmaterialien eines Urandioxidbrennelements und Abbränden von  $45 \text{ GWd}/t_{SM}$ . Es

Tabelle 8.3: Vergleich der Garantiewerte für Mischoxid-Abfallgebinde

| Garantieparameter                          | Garantiewert | Referenz | MOX45/50 | MOX65/50 | MOX65/65 |
|--|--------------|----------|----------|----------|----------|
| $A(^{137}\text{Cs}) \text{ TBq}$           | 65           | 38,1     | 37,9     | 37,9     | 37,8     |
| $A(^{90}\text{Sr} + \text{Y}) \text{ TBq}$ | 115          | 54,4     | 28,0     | 27,3     | 27,2     |
| $A(^{241}\text{Pu}) \text{ TBq}$           | 75           | 15,6     | 55,1     | 73,4     | 80,3     |
| $A(^{244}\text{Cm}) \text{ TBq}$           | 2            | 0,6      | 5,8      | 7,9      | 7,9      |
| $A(\text{Pu})_{\alpha} \text{ TBq}$        | 3,3          | 0,41     | 2,2      | 4,1      | 4,5      |
| $A(\alpha) T_{1/2} > 50a \text{ TBq}$      | 4,2          | 1,15     | 8,7      | 13,0     | 13,4     |
| Thermische Leistung W                      | 90           | 52,0     | 60,7     | 63,5     | 63,1     |

ist deutlich zu erkennen, dass zwei der Mischoxidbrennstoffe die Grenzwerte für  $\text{Pu}_{\alpha}$  und langlebige  $\alpha$ -Stahler überschreiten. Da die Kühlzeit durch die langen Halbwertszeiten nur eine untergeordnete Rolle spielt, ist davon auszugehen, dass nach derzeitig gültigen Grenzwerten die Abfallgebinde mit Resten von Mischoxidbrennelementen nicht zurückgeführt werden können. Für solche Abfälle müssen neue Grenzwerte festgelegt werden.

### 8.3 Brennstoffhülsen aus Niob-Legierungen

Die Steigerung der Abbrände ist primär auf die höhere Anreicherung der Brennstoffe, aber auch auf den Einsatz neuer Brennstabmaterialien zurückzuführen. Die Einführung von Zirkonium/Niob-Legierungen führte dazu, dass die Versprödung und Oxidbildung deutlich reduziert wurde (Agency, 2007). Die bisherige Freigabe des BMU sieht vor, dass keine Zirkonium/Niob-Legierungen in die hochdruckkompaktierten Abfälle eingebracht werden dürfen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass durch Neutroneneinfangreaktionen im  $^{93}\text{Nb}$  das langlebige Nuklid  $^{94}\text{Nb}$  erzeugt wird. Der Einfangquerschnitt für thermische Neutronen beträgt laut der ENDF-VII.0 7,52 barn.  $^{94}\text{Nb}$  besitzt eine Halbwertszeit von 20.400 Jahren. Die Untersuchung in diesem Abschnitt soll einen Eindruck davon vermitteln, wie zusätzliche  $^{94}\text{Nb}$  Anteile sich auf die gesamte Radiotoxizität eines Abfallgebindes auswirken. Für die Untersuchung wurden zwei unterschiedliche Brennelemente herangezogen, sowohl mit Zircaloy-4 als Hülsenmaterial, als auch mit der Niob/Zirkonium-Legierung M5 (Rudling u. a., 2007). Aus den Brennelementen werden, wie in den Abschnitten zuvor, die Eigenschaften der Abfallgebinde ermittelt. Zusätzlich wird eine geplante Endlagerphase von einer Millionen Jahre mit berechnet.

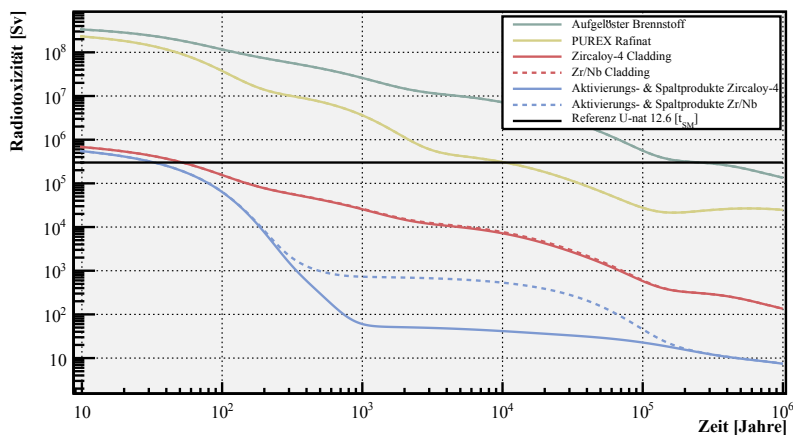


Abbildung 8.2: Vergleich der Radiotoxizität unterschiedlicher Cladding-Materialien

Abbildung 8.2 zeigt die Radiotoxizität über die Zeit. Um eine Einordnung der Radiotoxizität vorzunehmen, wurden ebenfalls weitere Vergleichskurven geplottet. Insgesamt wurde

für beide Fälle 1,5 t<sub>SM</sub> angenommen. Um eine Anreicherung von 4,0 % zu erreichen, bei einer verbleibenden Konzentration von 0,2 % <sup>235</sup>U in den Tails, werden 12,6 Tonnen natürliches Uran benötigt. Zudem sind die bekannten Kurven für den aufgelösten Brennstoff sowie das PUREX-Rafinat eingezeichnet, bei einem Abtrennungsfaktor von 99,9 % für Plutonium. Der Vergleich der Kurven der Aktivierungs- und Spaltprodukte zeigt deutlich den Unterschied zwischen den Claddingsorten. Sobald die kurzlebigen Spaltprodukte nach 200-300 Jahren abgeklungen sind, wird das Plateau deutlich, das durch die <sup>94</sup>Nb Aktivität der Claddings entsteht. Nach zehn Halbwertszeiten des <sup>94</sup>Nb ist das M5-Cladding auf demselben Radiotoxizitätswert wie das <sup>94</sup>Nb Material. An diesem Zeitpunkt wird die Radiotoxizität der Aktivierungs- und Spaltprodukte dominiert durch <sup>99</sup>Tc. Wird nun zusätzlich die Verunreinigungen der Hülzen durch anhaftende Actinoide mit betrachtet, ergibt sich ein geändertes Bild.

Die Radiotoxizität steigt um fast zwei Größenordnungen an. Somit wird deutlich, dass die Radiotoxizität der Abfälle nicht durch die Aktivierungs- oder Spaltprodukte dominiert wird, sondern, wie auch bei den hochaktiven Glasgebinden, durch die Actinoide. In der doppellogarithmischen Darstellung des Graphen ist noch erkennbar, dass die Aktivierung von <sup>94</sup>Nb zu einer Erhöhung der Radiotoxizität der Abfallgebinde führt. Ein Aspekt ist an dieser Stelle noch erwähnt. Die Wahl von M5 als Hülzenmaterial beeinflusst auch die Zwischenlager- und Transporteigenschaften. Zircaloy-4 weist einen Anteil von 1,5 % Zinn auf. Durch Neutroneneinfangreaktionen entsteht aus dem <sup>124</sup>Sn und anschließendem Beta-Zerfall das Antimonnuklid <sup>125</sup>Sb, was einen Einfluss auf die Dosisleistung der Abfälle besitzt. Bei M5 als Claddingmaterial fehlt die Zinnkomponente in der Legierung, was zu geringeren Dosisleistungen führt.

## 8.4 Folgerung

Die Produkteigenschaften von Abfallgebinden aus dem erweiterten Parameterraum wurden mit Hilfe des entwickelten Kopplungsprogramms ermittelt. Eine Untersuchung zur Erweiterung der derzeit gültigen BMU-Freigabe zeigt, dass bei einigen der gewählten Modelle der Abfalleigenschaften die bisherigen Produktgrenzwerte überschreiten würden. Insbesondere für den Fall der Mischoxidbrennstoffe treten bei drei Garantiewerten Überschreitungen auf. Diese Überschreitungen lassen sich auch nicht durch eine Verlängerung der initialen Kühlzeiten vor Einbringung in ein Endlager in den derzeit gültigen Rahmen einordnen.

Daher muss zumindest für Abfälle mit Mischoxidanteil eine neue Produktspezifikation erfolgen. Auch der Fall der hochabgebrannten Brennstoffe zeigt, dass die derzeit gültigen Grenzwerte dafür zu eng ausgelegt sind. Lediglich der Fall der Zircaloy/Niob-Legierung ist unkritisch zu bewerten, da der Hauptteil der Radiotoxizität nicht aus den Strukturmaterialien, sondern den anhaftenden Brennstoffresten entstammt.

## 9 Zusammenfassung und Ausblick

Die unabhängige Produktkontrolle radioaktiver Abfälle stellt einen zentralen Eckpfeiler jeder nationalen Abfallmanagementstrategie dar. Nicht nur die Abfallgebinde an sich, sondern der gesamte Herstellungsprozess sowie die Ursprünge der Abfälle, stellen die Grundlage der Bewertung dar. Die in dieser Arbeit betrachteten Abfälle entstammen der Wiederaufarbeitung von abgebrannten Kernbrennstoffen und somit einem qualifizierten Prozess. Sowohl die Prozessparameter als auch die Produkteigenschaften unterliegen der regelmäßigen Prüfung durch eine Kontrollinstanz. Ziel dieser Arbeit war die Schaffung einer software- und hardwaretechnischen Infrastruktur, um die Produktkontrolle in ihrer Arbeit zu unterstützen. Der aufgebaute Cluster ging Mitte 2010 in Betrieb und hat sich in den letzten Jahren als produktives Arbeitssystem etabliert. Der Schwerpunkt der Entwicklung dieser Plattform lag in der Anwendung von Simulationsrechnungen der Kerntechnik und wurde somit auf diesen Anwendungsfall hin optimiert. Das System stellt eine Brücke zwischen den Arbeitsplatz- und den Hochleistungsrechnern des Forschungszentrum in Jülich dar.

Die Datengrundlage auf deren Basis die Qualität von Abfallgebinden begutachtet werden soll, ist teilweise durch fehlenden Einblick in die Prozesse unvollständig. An diesem Punkt soll die entstandene Softwareinfrastruktur ansetzen, um auf Basis von generischen Modellierungen und der Untersuchung von Szenarien fehlende Informationen zu ergänzen und somit einen besseren Blick auf die Herstellungsprozesse zu gewinnen sowie deren Auswirkungen auf die Abfallgebinde abzuschätzen.

Die Softwareumgebung greift auf weltweit akzeptierte und bereits gut validierte Simulationscodes zurück. Diese umfassen sowohl Reaktorphysikcodes als auch Software zur Simulation des Strahlungstransports. Die neu entwickelte Software koppelt diese bekannten Funktionalitäten und ergänzt Prozesse, die die Herstellung von Abfällen aus der Wiederaufarbeitung abbilden.

Die Software ist als Klassenbibliothek aufgebaut, die modular und dynamisch zu neuen Anwendungen zusammengesetzt werden kann. Die Anwendung von objekt-orientierten Designregeln ermöglicht es, die Software weiter zu entwickeln und bietet den Nutzern die



höchstmögliche Flexibilität bei der Umsetzung der für sie notwendigen Aufgaben. Die Funktionalität des Softwaresystems wurde auf Basis eines ausführlichen Validierungs- und Benchmarkprogramms verifiziert. Hierzu kam neben theoretischen Vergleichsrechnungen auch die Modellierung realer Abfallgebinde der Verglasungseinrichtung in Karlsruhe.

Die Ergebnisse der Vergleichsrechnungen lassen sich zusammenfassen, dass die ausgewählten Reaktorphysikcodes einen direkten Vergleich mit anderen etablierten Codes bestehen und, dass aus der Anwendung des Kopplungsprogramms die Produkteigenschaften der Karlsruher Glasgebinde positiv verifiziert werden konnten.

Der bisherige Hauptanwendungsfall der Software liegt in der Bestimmung der Produkteigenschaften des hochdruckkompaktierten Abfallstroms von Hülzen und Strukturteilen aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen. Dieser Produktstrom zeichnet sich durch seine hohe Dichte und durch die Heterogenität der Abfallmatrix aus. Die Produkteigenschaften wurden durch die Kombination von Abbrandrechnungen und Teilchentransport-simulationen ebenfalls durch Anwendung des Kopplungsprogramms bestimmt.

Aus der Untersuchung der Szenarien für die derzeit akzeptierten Produkteigenschaften zeigte sich, dass für die betrachteten Abfallströme die Daten sehr konservativ ausgelegt sind. Somit konnte für die Produktkontrolle hergeleitet werden, dass die derzeitigen Abfallspezifikationen wegen der starken Konservativität leicht einzuhalten sind. Eine mögliche Erweiterung der derzeit gültigen Abfallströme zeigt, dass sowohl im Fall des Hochabbrands als auch bei Mischoxidbrennstoffen die derzeit zulässigen Grenzwerte überschritten werden. Diese Überschreitungen lassen sich nicht mit den bisher gültigen Produkteigenschaften abdecken und bedürfen einer Erweiterung der Produktspezifikation. Im Fall einer Erweiterung ist die Produktkontrollstelle durch die neu entwickelten Softwaretools in der Lage, eigene Berechnungen zur Verifizierung durchzuführen.

Die generische Simulation der Abfalldaten ist nicht auf den Fall des hochdruckkompaktierten Abfallstroms oder die Glasprodukte beschränkt. Die Software ist durch ihre Modularität und Erweiterbarkeit so gestaltet, dass auch mögliche zukünftige alternative Wiederaufarbeitungsszenarien betrachtet werden können. Durch Austausch der bisherigen Prozessparameter lassen sich so neben dem besprochenen Abfällen auch die Produkteigenschaften von "Partitioning & Conditioning" (P&C)-Konzepten aus Sicht der Produktkontrolle untersuchen.

Die in dieser Arbeit verwendeten Prozessparameter wurden aus unterschiedlichen öffentlich zugänglichen Quellen abgeleitet. Für die Nutzung der Software im Rahmen der Produktkontrolle von wärmeentwickelnden Abfallgebinden, die für ein deutsches Endlager bestimmt

sind, ist es daher notwendig, eine weitere Verifizierung der Parameter in Zusammenarbeit mit den Abfallkonditionierern vorzunehmen.

Die im Rahmen dieser Arbeit entstandene Softwareplattform für die Simulation von radioaktiven Abfallgebinden, basiert auf validierten und weltweit akzeptierten Simulationscodes. Die Ergebnisse zeigen, dass bereits in der Testphase belastbare Aussagen über die Einhaltung von Produkteigenschaften erzielt werden können. Daher ist davon auszugehen, dass die Software in Zukunft einen wichtigen Beitrag für die unabhängige Produktkontrolle liefern wird.



## Abbildungsverzeichnis

|     |   |    |
|-----|---|----|
| 1.1 | Nuklearer Brennstoffkreislauf, vgl. (Shultis u. Richard, 2007) . . . . .  | 10 |
| 2.1 | Variation des Moderator zu Brennstoffverhältnisses berechnet mittels TRITON/NEWT (Bowman, 2011) . . . . .                                       | 28 |
| 2.2 | Doppelhöckerkurven für die thermische Spaltung von $^{235}\text{U}$ und $^{239}\text{Pu}$ (Entnommen aus der ENDF-B/VII.0-Bibliothek) . . . . . | 31 |
| 2.3 | Berechnete Zusammensetzung des abgebrannten Kernbrennstoffs bezogen auf eine Tonne Schwermetall . . . . .                                       | 32 |
| 2.4 | Berechnete Nachzerfallswärme eines Brennelements mit einem Abbrand von $45 [\text{GWd}/t_{SM}]$ . . . . .                                       | 33 |
| 2.5 | Berechnete Radiotoxizität eines Brennelements mit einem Abbrand von $45 [\text{GWd}/t_{SM}]$ . . . . .  | 34 |
| 3.1 | Konzeptionelle Darstellung eines Prüfprogramms für Abfälle aus der Wiederaufarbeitung und deren Konditionierung für ein Endlager . . . . .      | 36 |
| 3.2 | Programmablaufplan einer Abbrandrechnung mittels TRITON ((DeHart, 2009), eigene Darstellung) . . . . .  | 42 |
| 3.3 | ORIGEN-Versionshistorie (Quelle: SCALE-Schulungsunterlagen, eigene Darstellung) . . . . .   | 46 |
| 3.4 | Ausschnitt einer Eingabe eines zylinderförmigen Objekts in MCNP . . . . .   | 50 |
| 3.5 | Links: Drei Oberflächen des Zylinders. Rechts: Zylindervolumen nach boole'schen Operationen . . . . .   | 51 |
| 3.6 | Darstellung des UML-Diagramms der modellierten Hauptkomponenten des Kopplungsprogramms . . . . .  | 60 |
| 3.7 | Prüfroutine für thermische Leistung . . . . .   | 65 |
| 3.8 | Zusammenhang zwischen Abbrand und Aktivitätsverhältnis von $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ als Ergebnis der Korrelationsrechnung . . . . .    | 66 |

|      |  |     |
|------|--|-----|
| 3.9  | Ergebnis der Radiotoxizitätsberechnung der vier Szenarien, Referenzlinie entspricht frischem Urandioxidbrennstoff . . . . .              | 69  |
| 3.10 | Simulationskonzept einer hypothetischen Wiederaufarbeitungsanlage . . . .  | 71  |
| 3.11 | Konzept der Modellierung . . . . .   | 76  |
| 3.12 | Konzept der Head-End-Routine . . . . .   | 77  |
| 4.1  | Vergleich zwischen <i>shared-memory</i> (links) und <i>distributed-memory</i> (rechts)   | 80  |
| 4.2  | Die vier logischen Ebenen eines Cluster-Systems . . . . .  | 82  |
| 4.3  | Schematische Darstellung des Cluster-Systems . . . . .   | 83  |
| 4.4  | Schematische Darstellung des Cluster-Systems . . . . .   | 86  |
| 4.5  | Laufzeitverhalten des EP-Benchmarks . . . . .  | 93  |
| 4.6  | Laufzeitverhalten des LU-Benchmarks . . . . .  | 94  |
| 4.7  | Laufzeitverhalten einer MCNP/X-Simulation . . . . .  | 96  |
| 5.1  | Layout des 17 x 17 Brennelements für die Vergleichsrechnung, eigene Darstellung (Barreau, 2006) . . . . .                                | 101 |
| 5.2  | Erzeugungswege für $^{155}\text{Gd}$ . . . . .   | 103 |
| 5.3  | Vergleich der Messergebnisse beider Laboratorien an ausgewählten Nukliden  | 107 |
| 5.4  | Vergleich der Ergebnisse für zwei- und dreidimensionale Abbrandrechnungen des Brennelements 124, Brennstab E3, Messposition P3 . . . . . | 109 |
| 5.5  | Verlauf der gewählten Reaktorparameter für die SCALE-Simulationen . . .  | 111 |
| 5.6  | Layout des GKN-II Brennelements . . . . .  | 112 |
| 5.7  | Vergleich der Oak-Ridge Studie mit dem Simulationsergebnis des Basisfalls  | 115 |
| 5.8  | Vergleich der Oak-Ridge Studie mit der Messung . . . . .   | 116 |
| 5.9  | Ergebnisse der GKN-II Variationsrechnungen . . . . .   | 117 |
| 5.10 | Geometrie der MCNP-Simulation der VEK-Gebinde, Links: (x-y)-Ebene, Rechts: (y-z)-Ebene . . . . .   | 121 |
| 5.11 | Vergleich zwischen der deklarierten und berechneten Neutronendosisleistung der VEK-Gebinde . . . . .                                     | 123 |
| 5.12 | Korrelation zwischen der deklarierten und berechneten Neutronendosisleistung der VEK-Gebinde . . . . .                                   | 124 |
| 5.13 | Radiotoxizität von 10 Abfallgebinden der Verglasungskampagne . . . . .   | 125 |
| 6.1  | Links - DWR-A vom Typ 14x14, Rechts -DWR-D vom Typ 18x18 . . . . .   | 131 |
| 6.2  | Entstehung von $^{137}\text{Cs}$ als Spaltprodukt und durch (n, $\gamma$ )-Reaktionen aus $^{136}\text{Xe}$                              | 136 |
| 6.3  | Abhängigkeit des Aktivitätsverhältnis der Schlüsselnuklide vom Abbrand .   | 139 |

|     |  |     |
|-----|--|-----|
| 6.4 | Verhalten der $A(^{154}\text{Eu})/A(^{134}\text{Cs})$ -Korrelation . . . . .                               | 140 |
| 6.5 | $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -Korrelation im Vergleich mit gemessenen Nuklidverhältnissen .           | 142 |
| 6.6 | $^{154}\text{Eu}/^{137}\text{Cs}$ -Korrelation im Vergleich mit gemessenen Nuklidverhältnissen .           | 143 |
| 7.1 | Tiefenprofil der Spaltproduktaktivitäten im Zircaloy Cladding (Restani u. a., 1992) . . . . .              | 151 |
| 7.2 | Energieverteilung der Spaltprodukte, vgl. (Romano u. a., 2010) . . . . .                                   | 152 |
| 7.3 | Darstellung der Zählhäufigkeit gegen Startposition . . . . .   | 153 |
| 7.4 | ENDF-VII.0 Wechselwirkungsquerschnitt für Zirkonium . . . . .  | 157 |
| 7.5 | Geometrie der MCNP-Simulation . . . . .  | 159 |
| 7.6 | Aus MCNP bestimmter energieabhängiger Wechselwirkungsquerschnitt für eine Eisen/Zirkonium-Mixtur . . . . . | 162 |
| 7.7 | Geometrische Modelle für die Kritikalitätsbestimmung . . . . .   | 165 |
| 7.8 | Kritikalität in Abhängigkeit der Füllhöhe, vgl. Schneider u. a. (2011) . . .                               | 166 |
| 8.1 | Vergleich der Korrelationsfunktionen für den Hochabbrand . . . . .   | 172 |
| 8.2 | Vergleich der Radiotoxizität unterschiedlicher Cladding-Materialien . . . .                                | 174 |



## Tabellenverzeichnis

|     |   |     |
|-----|---|-----|
| 3.1 | Mögliche Einheiten der Nuklidklasse . . . . .   | 58  |
| 3.2 | Konversionsmatrix der <i>cconversion</i> -Klasse . . . . .  | 62  |
| 3.3 | Vier mögliche P&T-Szenarien, MA steht für Minore Actinoide. . . . .   | 68  |
| 3.4 | Ermittelte Kühlzeit der Spüllösung . . . . .  | 72  |
| 3.5 | Ermittelter Zielabbrand der Spüllösung . . . . .  | 73  |
| 3.6 | Abweichung zwischen erwarteter und errechneter <sup>79</sup> Se-Aktivität . . . . .   | 74  |
| 4.1 | Hardwareausstattung der Rechner . . . . .   | 83  |
| 4.2 | Parameter der TORQUE-Queues, alle Werte sind bezogen auf einen Job und Benutzer . . . . .   | 90  |
| 4.3 | Parallelisierungsmethoden der Simulationprogramme . . . . .   | 91  |
| 5.1 | Ausgewählte Testfälle, die Fallnummern beziehen sich auf die vorgegebene Nummerierung der Studie (Barreau, 2006) . . . . .  | 102 |
| 5.2 | Vergleich der Ergebnisse mit Standardparametern und optimierten Parametern . . . . .  | 104 |
| 5.3 | Brennelementdaten (Belgonucleaire, 2002) . . . . .  | 110 |
| 5.4 | Numerische Simulationsparameter des GKN-Benchmarks . . . . .  | 113 |
| 5.5 | Garantieparameter der VEK-Glasgebinde, vgl. (Lüdeke u. Odoj, 2004) . . .  | 122 |
| 6.1 | Geometrieparameter für Druckwasserbrennelemente . . . . .   | 130 |
| 6.2 | Geometrieparameter für SWR-Brennelemente . . . . .  | 131 |
| 6.3 | Variierte Reaktorparameter . . . . .  | 132 |
| 6.4 | Sensitivitätsparameter der Schlüsselnuklide . . . . .   | 132 |
| 6.5 | $\gamma$ -emittierende Spaltprodukte, die dominierende $\gamma$ -Linie bezieht sich auf das Schlüsselnuklid sowie die im Gleichgewicht stehenden Tochternuklide . . . | 135 |
| 6.6 | Ermittelte Werte der Kühlzeitkorrelation . . . . .  | 139 |
| 6.7 | Ermittelte Parameter der Korrelationsfunktionen . . . . .   | 141 |



|     |   |     |
|-----|---|-----|
| 6.8 | Schwankungsbreite der Spaltproduktkorrelationen bei 45 GWd/ $t_{SM}$ . . . . .  | 145 |
| 6.9 | Schwankungsbreite der Actinoidenkorrelationen bei 45 GWd/ $t_{SM}$ . . . . .  | 146 |
| 7.1 | Ermittelte Konzentrationen der Anhaftungen und Undissolution-Rates, vgl.<br>(Gue u. a., 1987), (Restani u. a., 1992) . . . . .                    | 150 |
| 7.2 | Eindringwahrscheinlichkeiten von Radionukliden in die Hüllrohrmaterialien<br>berechnet mittels MCNP/X. . . . .                                    | 154 |
| 7.3 | Zusammenfassung der Garantieparameter, mit freundlicher Genehmigung<br>der japanischen Atomenergiesicherheitsorganisation, vgl.(NITE, 2008) . . . | 155 |
| 7.4 | Vergleich der Photonenflüsse für den homogenen und heterogenen Fall . . .   | 159 |
| 7.5 | Vergleich des Neutronenfluss für den homogenen und heterogenen Fall . . .   | 163 |
| 7.6 | Erwartete Produkteigenschaften des hochdruckkompaktierten Abfallstroms<br>bei 45 GWd/ $t_{SM}$ . . . . .  | 168 |
| 8.1 | Erwartete Produkteigenschaften des hochdruckkompaktierten Abfallstroms<br>bei 65 GWd/ $t_{SM}$ . . . . .  | 170 |
| 8.2 | Zusammensetzung MOX-Brennstoffe in Gewichtsanteile . . . . .  | 173 |
| 8.3 | Vergleich der Garantieparameter für Mischoxid-Abfallgebinde . . . . .   | 173 |

## Literaturverzeichnis

- [Agency 2005] AGENCY, International Atomic E.: Status and trends in spent fuel reprocessing / International Atomic Energy Agency (IAEA). 2005. – Forschungsbericht
- [Agency 2007] AGENCY, International Atomic E.: Nuclear Power Plant Design Characteristics / International Atomic Energy Agency. 2007. – Forschungsbericht
- [Andrews 2009] ANDREWS, A.: Nuclear Fuel Reprocessing: U.S. Policy Development / Congressional Research Service. 2009. – Forschungsbericht
- [Andrieu u. a. 2005] ANDRIEU, C. ; RAVEL, S. ; DUCROS, G. ; LEMAIGNAN, C.: Release of fission tritium through Zircaloy-4 fuel cladding tubes. In: *Journal Nuclear Materials* 347 (2005), S. 12–19
- [Antcheva u. a. 2009] ANTICHEVA, I. ; M.BALLINTIJN ; B.BELLENOT ; ; M.BISKUP ; N.BUNCIC, R.Brun ; PH.CANAL ; D.CASADEI ; O.COUET ; V.FINE ; L.FRANCO ; G.GANIS ; A.GHEATA ; MALINE, D.Gonzalez ; M.GOTO ; IWASZKIEWICZ, J. ; KRESHUK, A. ; SEGURA, D. M. ; MAUNDER, R. ; MONETA, L. ; NAUMANN, A. ; OFFERMANN, E. ; ONUCHIN, V. ; PANACEK, S. ; RADEMAKERS, F. ; RUSSO, P. ; TADEL, M.: ROOT - A C++ framework for petabyte data storage, statistical analysis and visualization. In: *Comp. Phys. Com.* 180 (2009), S. 2499–2512
- [Attig u. a. 2011] ATTIG, N. ; GIBBON, P. ; LIPPERT, Th.: Trends in supercomputing: The European path to exascale. In: *Comp. Phys. Com.* 182 (2011), S. 2041–2046
- [Bailey 2010] BAILEY, D. H.: The NAS Parallel Benchmarks / Lawrence Berkeley National Laboratory. 2010 (LBNL-3494E). – Forschungsbericht
- [Barbero u. a. 1980] BARBERO, P. ; BIDOGLIO, G. ; CALDIROLI, A. ; DANIELE, F. ; MEESTER, R. D. ; ERNSTBERGER, R. ; FACCHETTI, S. ; FRIGO, A. ; GUARDINI, S. ; GUZZI,

- G. ; HANSEN, P. ; LEZZOLI, L. ; KOCH, L. ; KONRAD, W. ; LAMMARELLA, L. ; MANNO-  
NE, F. ; MARELL, A. ; SCHURENKAMPER, A. ; TRICHERINI, P. R. ; WELLUM, R.: Post  
Irradiation Analysis of the Obrigheim PWR Spent Fuel / Commission of the European  
Communities. 1980 (EUR 6589 EN). – Forschungsbericht
- [Barreau 2006] BARREAU, A.: *Burn-up Credit Criticality Benchmark - Phase II-D*.  
NUCLEAR ENERGY AGENCY, 2006
- [Baumgärtner 1969] BAUMGÄRTNER, F.: *Die Wiederaufarbeitung von Uran-Plutonium-  
Kernbrennstoffen*. Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1969
- [Becker u. a. 1995] BECKER, D.J. ; STERLING, T.L. ; SAVARESE, D.F. ; DORBAND, J.E. ;  
RANAWAK, U.A. ; PACKER, C.V.: Beowulf: A Parallel Workstation for Scientific Com-  
putation. In: *Proceedings of the International Conference on Parallel Processing*, 1995
- [Beckurts u. Wirtz 1964] BECKURTS, K. H. ; WIRTZ, K.: *Neutron Physics*. Springer Verlag,  
1964
- [Belgonucleaire 2002] BELGONUCLEAIRE: REBUS International Program-Reactivity Tests  
for a Direct Evaluation of the Burnup Credit on Selected Irradiated LWR Fuel Bundles,  
Fuel Irradiation History Report / SCK-CEN. 2002. – Forschungsbericht
- [Biß 2014] BISS, Klaus H.: *Transmutation von Transuranen in einem gasgekühlten be-  
schleunigergetriebenen System*, RWTH Aachen, Diss., 2014
- [Bock u. a. 1987] BOCK, R. ; BRUN, R. ; NIERHAUS, O. Couetand J.C. Marinand R. ;  
PAPE, L. ; SAUMON, N. ; VANDONI, C. ; ZANARINI, P.: PAW - Towards a physicsana-  
lysisworkstation. In: *Comp. Phys. Com.* 45 (1987), S. 181–190
- [Bonniaud u. a. 1980] BONNIAUD, R. ; JOUAN, A. ; SOMBRET, C.: Large Scale Production  
of Glass for High Level Radioactive Waste. In: *Nucl. Chem. Waste Management* 1 (1980),  
S. 3–16
- [Booth u. a. 2003] BOOTH, T E. ; GOORLEY, J. T. ; SOOD, A. ; BROWN, F. B. ; HUGHES,  
H. G. ; SWEETZ, J. E. ; BULL, J. S. ; MARTZ, R. ; ZUKAITIS, A. ; FORSTER, R. A. ;  
PRAEL, R. E.: *MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5*.  
Los Alamos National Laboratory, 2003
- [Bowman 2011] BOWMAN, S. M.: SCALE 6: Comprehensive Nuclear Safety Analysis Code  
System. In: *Nucl. Technol.* 174 (2011), Nr. 2, S. 126–148

- [Brennecke 1994] BRENNKE, Peter: Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle : (Endlagerbedingungen, Stand: September 1994) Schachtanlage Konrad / Bundesamt für Strahlenschutz. 1994 (BFS-ET-03/90,REV.03). – Forschungsbericht
- [Broothaerts u. a. 1985] BROOTHAERTS, J. ; CASTEELS, F. ; DANIELS, A. ; REGGE, P. D. ; HUYS, D. ; LEURS, A.: Conditioning of Cladding Waste Press Compaction and Encapsulation by Low Melting Alloys / SCK/CEN. 1985. – Forschungsbericht
- [Caruso u. a. 2007] CARUSO, S. ; MURPHY, M. ; CHAWLA, R.: Validation of Cs-134, Cs-137 and Eu-154 single ratios as burnup monitors for ultra-high burnup UO<sub>2</sub> fuel. In: *Annals of Nuclear Energy* 34 (2007), S. 28–35
- [Courcelle u. a. 2004] COURCELLE, A. ; SANTAMARINA, A. ; MENGELLE, S.: Improvements of Isotopic Ratios Prediction through Takahama-3 Chemical Assays with the JEFF3.0 Nuclear Data Library. In: *PHYSOR*, 2004
- [DeHart 2009] DEHART, M. D.: *TRITON: A Two-Dimensional Transport And Depletion Module For Characterization Of Spent Nuclear Fuel*. ORNL/TM-2005/39/T1. Oak Ridge National Laboratory, 2009
- [DeHart 2006] DEHART, M.D.: Advancements in generalized-geometry discrete ordinates transport for lattice physics calculations. In: *Proceedings of PHYSOR*, 2006
- [Dyck 2001] DYCK, H.P.: Implementation of Burnup Credit in Spent Fuel Management Systems. In: *Implementation of Burnup Credit in Spent Fuel Management Systems*. IAEA, 2001
- [Fernandes u. a. 2003] FERNANDES, A. C. ; GONCALVES, I. C. ; BARRADAS, N. P.: Monte Carlo Modelling of the Portuguese Research Reactor Core and Comparison with Experimental Measurements. In: *Nuclear Technology* 143 (2003), S. 358–363
- [Forster u. a. 2003] FORSTER, R.A. ; COX, L. J. ; BARRETT, R. F. ; BOOTH, T. E. ; BRIESMEISTER, J. F. ; BROWN, F. B. ; BULL, J. S. ; GEISLER, J. G. ; GOORLEY, J. T. ; MOSTELLER, R. D. ; POSTA, S. E. ; PRAEL, R. E. ; SELCOW, E. C. ; SOOD: MCNP Version 5. In: *Nucl. Inst. Meth. B* 213 (2003), S. 82–86
- [Frotscher u. a. 1982] FROTSCHER ; GRÄBNER ; KAPULLA ; SPENK: Konditionierung von Hüllen bestrahlter Brennelemente durch Walzen und Einbetten in Beton / Kernforschungszentrum Karlsruhe. 1982. – Forschungsbericht

- [Gauld u. a. 2011] GAULD, I. C. ; RADULESCU, G. ; ILAS, G. ; MURPHY, B. D. ; M. L. WILLIAMS, and D. W.: Isotopic Depletion and Decay Methods and Analysis Capabilities in SCALE. In: *Nucl. Technol.* 174 (2011), S. 169–195
- [Gauld u. a. 2002] GAULD, I. C. ; SHORES, E. F. ; PERRY, R. T.: New Neutron Source Algorithms in the ORIGEN-S Code. In: *American Nuclear Society/Radiation Protection & Shielding Division 12th Biennial RPSD Topical Meeting*, 2002
- [Goorley u. a. 2011] GOORLEY, T. ; JAMES, M. ; BOOTH, T. ; BROWN, F. ; BULL, J. ; COX, L. ; DURKEE, J. ; ELSON, J. ; FENSIN, M. ; FORSTER, R.A. ; HENDRICKS, J. ; HUGHES, H.G. ; JOHNS, R. ; KIEDROWSKI, B. ; MARTZ, R. ; MASHNIK, S. ; KINNEY ; ELOWITZ, D.P. ; PRAEL, R. ; SWEETZY, J. ; WATERS, L. ; WILCOX, T. ; ZUKAITIS, T.: Initial MCNP6 Release Overview / Los Alamos National Laboratory. 2011 (LA-UR-11-07082). – Forschungsbericht
- [Gropp u. a. 1996] GROPP, W. ; LUSK, E. ; DOSS, N. ; SKJELLUM, A.: A high-performance, portable implementation of the MPI messagepassinginterface standard. In: *Parallel Computing* 22 (1996), S. 789–828
- [Gue u. a. 1987] GUE, J. P. ; ISAAC, M. ; W, Hebel: Characterization of Whole Assembly Hulls produced by Industrial Reprocessing of LWR Fuels. In: *Waste Management Conference*, 1987
- [Hebel u. Cottone 1983] HEBEL, W. (Hrsg.) ; COTTONE, G. (Hrsg.): *Conditioning and Storage of Spent Fuel Element Hulls*. Harwood Academic Publishers, 1983
- [Heinricke 1998] HEINRICKE, W.: *Handbuch zur Kritikalität*. Gesellschaft für Anlagen-und Reaktorsicherheit, 1998
- [Hermann u. Berndt 1983] HERMANN, A. ; BERNDT, R.: New Possibilities In Isotope Correlation Analsis Of Spent Nuclear Fuel. In: *Journal of Radioanalytical Chemistry* 80 (1983), Nr. 1-2, S. 189–198
- [Hoefflinger u. a. 2001] HOEFLINGER, Jay ; ALAVILLI, Prasad ; JACKSON, Thomas ; KUHN, Bob: Producing scalable performance with OpenMP: Experiments with two CFD applications. In: *Parallel Computing* 27 (2001), S. 391–413
- [IAEA 2007] IAEA: *Strategy and Methodology for Radioactive Waste Characterization*. TE-1537. International Atomic Energy Agency, 2007

- [ICRP 1997] ICRP: Volume 74: ICRP Publication 74: Conversion Coefficients for use in Radiological Protection against External Radiation, 1st Edition / ICRP. 1997 (Annals of the ICRP Volume 26/3). – Forschungsbericht
- [Inoue u. a. 1991] INOUE, T. ; SAKATA, M. ; MIYASHIRO, H. ; YOSHIKI, N. ; MATSUMURA, T. ; SASAHARA, A.: Development of partitioning and transmutation technology for long-lived nuclides. In: *Nucl. Technol.* 93 (1991), Nr. 2, S. 206–220
- [Int 2011] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (Hrsg.): *Impact of High Burnup Uranium Oxide and Mixed Uranium-Plutonium Oxide Water Reactor Fuel on Spent Fuel Management*. NF-T-3.8. International Atomic Energy Agency, 2011
- [Irish u. Reas 1957] IRISH, E. R. ; REAS, W. H.: The Purex Process - A Solvent Extraction-Reprocessing Method for Irradiated Uranium / General Electric. 1957. – Forschungsbericht
- [Kasselmann u. a. 2014] KASSELMANN, S. ; DRUSKA, C. ; HERBER, S. ; JÜHE, S. ; KELLER, F. ; LAMBERTZ, D. ; S. SCHOLTHAUS, J. L. ; SHI, D. ; XHONNEUX, A. ; ALLELEIN, Hans-Josef: Status of the development of a fully integrated code system for the simulation of high temperature reactor cores. In: *Nucl. Eng. Des.* 271 (2014), S. 341–347
- [Knoll 2000] KNOLL, G. F.: *Radiation Detection and Measurement*. J. Wiley and Sons Inc., 2000
- [Lamarsh u. Baratta 2001] LAMARSH, J. R. ; BARATTA, A. J.: *Introduction to Nuclear Engineering*. Prentice Hall, 2001
- [Lüdeke u. Odoj 2004] LÜDEKE, M. ; ODOJ, R.: PKS-Gutachten zum "Handbuch zur Verfahrensqualifikation (HVQ)" der Verglasungseinrichtung Karlsruhe (VEK) / Forschungszentrum Jülich GmbH. 2004 (PKS\_TECDOC-04-003-01). – Forschungsbericht
- [Madic u. a. 2007] MADIC, C. ; BOULLIS, B. ; BARON, P. ; TESTARD, F. ; HUDSON, M. J. ; LILJENZIN, J.-O. ; CHRISTIANSEN, B. ; FERRANDO, M. ; FACCHINI, A. ; GEIST, A. ; MODOLO, G. ; ESPARTERO, A.G. ; MENDOZA, J. D.: Futuristic back-end of the nuclear fuel cycle with the partitioning of minor actinides. In: *Journal of Alloys and Compounds* 444-445 (2007), S. 23–27

- [Madland u. Nix 1982] MADLAND, D.G ; NIX, J.R.: New calculation of prompt fission neutron spectra and average prompt neutron multiplicities. In: *Nucl. Sci. Eng.* 81 (1982), S. 213–271
- [Magill u. a. 2003] MAGILL, J. ; BERTHOU, V. ; HAAS, D. ; GALY, J. ; SCHENKEL, R. ; WIESE, H.-W. ; HEUSENER, G. ; TOMMASI, J. ; YOUINOU, G.: Impact limits of partitioning and transmutation scenarios on the radiotoxicity of actinides in radioactive waste. In: *Nucl. Energy* 42 (2003), Oct, Nr. 5, S. 263–277
- [Matzke 1992] MATZKE, H.: On the rim effect in high burnup UO<sub>2</sub> LWR fuels. In: *Journal Nuclear Materials* 189 (1992), S. 141–148
- [Montero u. a. 2011] MONTERO, R. S. ; MORENO-VOZMEDIANO, R. ; LLORENTE, I. M.: An elasticity model for High Throughput Computing clusters. In: *Journal of Parallel and Distributed Computing* 71 (2011), S. 750–757
- [Neeb 1997] NEEB, K.-H.: *The Radiochemistry of Nuclear Power Plants with Light Water Reactors*. De Gruyter, 1997
- [Nichols 2002] NICHOLS, A. L.: Nuclear Data Requirements for Decay Heat Calculations / International Atomic Energy Agency. 2002. – Forschungsbericht
- [NITE 2008] NITE: Untersuchung der Spezifikation des Festkörperabfalls (CSD-C) / National Institute of Technology and Evaluation. 2008. – Forschungsbericht
- [Nuc 2004] NUCLEAR ENGINEERING INTERNATIONAL (Hrsg.): *Fuel Design Data*. Nuclear Engineering International, September 2004
- [Papula 2001] PAPULA, L.: *Mathematische Formelsammlung*. Vieweg Verlag, 2001
- [Parks 1992] PARKS, C. V.: Overview Of ORIGEN2 And ORIGEN-S: Capabilities And Limitations. In: *Proceedings of the 1992 International High-Level Radioactive Waste Management Conference*, 1992
- [Paul 2005] PAUL, B.: Copyright or copyleft?: An analysis of property regimes for software development. In: *Research Policy* 34 (2005), S. 1511–1532
- [Phillips u. a. 1979] PHILLIPS, J. R. ; BEMENT, T. R. ; KAIODA, K. ; MEDINA, E. G.: *Nondestructive Verification of Relative Burnup Values and Cooling Times of Irradiated MTR Fuel Elements*. LA-7949-MS. Los Alamos National Laboratory, 1979

- [Pouris 1986] POURIS, Anastassios: The future cost of uranium enrichment. In: *Energy Policy* 14 (1986), S. 558–567
- [Querner u. a. 1991] QUERNER, G. ; BERGMANN, J. ; BLAU, W.: A method for data reduction and optimal experimental design in XPD. In: *Proceedings of the 1st European Conference on Powder Diffraction (EPDIC 1)* Bd. 1, 1991, S. 107–112
- [Radulescu u. Wagner 2011] RADULESCU, G. ; WAGNER, J.: Review Of Results For The OECD/NEA Phase VII Benchmark. In: *International High-Level Radioactive Waste Management Conference*, 2011
- [Radulescu u. Wagner 2012] RADULESCU, G. ; WAGNER, J.: Burn-up Credit Criticality Safety Benchmark Phase VII / OECD/NEA. 2012. – Forschungsbericht
- [Raoux u. a. 2003] RAOUX, A.-C. ; LYOUSSI, A. ; PASSARD, C. ; DENIS, C. ; LORIDON, J. ; MISRAKI, J. ; CHANY, P.: Transuranic waste assay by neutron interrogation and online prompt and delayed neutron measurement. In: *Nucl. Instr. Meth. B* 207 (2003), S. 186–194
- [Rea 2005] REAKTORSICHERHEITSKOMMISSION (Hrsg.): *Spezifikation der Fa. Areva/Cogema zu hochdruckkompaktierten radioaktiven Abfällen (CSD-C) aus der Wiederaufarbeitung von deutschen LWR-Brennelementen*. 386. Sitzung. Reaktorsicherheitskommission, 2005
- [Resources 2009] RESOURCES, Cluster: *TORQUE Administrator's guide*. Cluster Resources Inc., 2009
- [Restani u. a. 1992] RESTANI, R. ; AERNE, E. T. ; BART, G. ; LINDER, H. P. ; MÜLLER, A. ; PETRIK, F.: Characterisation of PWR Cladding Hulls from Commercial Reprocessing / NAGRA. 1992. – Forschungsbericht
- [Romano u. a. 2010] ROMANO, C. ; DANON, Y. ; BLOCK, R. ; THOMPSON, J. ; BLAIN, E. ; BOND, E.: Fission fragment mass and energy distribution as a function of incident neutron energy measured in a lead slowing-down spectrometer. In: *Physical Review C: Nuclear Physics* 81 (2010)
- [Roth u. Weisenburger 2000] ROTH, G. ; WEISENBURGER, S.: Vitrification of high-level liquid waste: glass chemistry, process chemistry and process technology. In: *Nucl. Engineering and Design* 202 (2000), S. 197–207



- [Rudling u. a. 2007] RUDLING, P. ; STRASSER, A. ; GARZAROLLI, F.: Welding of Zirconium Alloys / Advanced Nuclear Technology International. 2007. – Forschungsbericht
- [Schneider u. a. 2011] SCHNEIDER, S. ; TIETZE-JAENSCH, H. ; BOSBACH, D.: Numerical Tools for the Evaluation of Super-Compacted Radioactive Waste Residues. In: *Progress in Nuclear Science And Technology Volume 2*, 2011
- [Shultis u. Richard 2007] SHULTIS, J. K. ; RICHARD, E. F.: *Fundamentals of Nuclear Science and Engineering*. CRC Press Inc., 2007
- [Smith 1997] SMITH, H.: *Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides*. 72. International Commission on Radiological Protection, 1997
- [Stanculescu 2006] STANCULESCU, A.: IAEA activities in the area of partitioning and transmutation. In: *Nucl. Inst. Meth. A* 562 (2006), S. 614–617
- [Suyama u. a. 2003] SUYAMA, K. ; A. NOURI AND, H. M. ; NOMURA, Y.: Improvements to SFCOMPO - a Database on Isotopic Composition of Spent Nuclear Fuel. In: *Proceedings of the 7th International Conference on Nuclear Criticality Safety ICNC*, 2003
- [Sweezy 2008] SWEETZY, J. E.: *MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5 Volume I: Overview and Theory*. LA-UR-03-1987. Los Alamos National Laboratory, 2008
- [Toubon u. a. 2003] TOUBON, H. ; VUILLIER ; GAIN, T. ; HUVER, M.: Calibration And Hot Testing Of The Advanced Nuclear Measurement Systems Used For Waste Characterization In COGEMAs New ACC Compaction Facility. In: *Waste Mangagement Conference*, 2003
- [Vertes u. a. 2011] VERTES, A. (Hrsg.) ; NAGY, S. (Hrsg.) ; KLENCZAR, Z. (Hrsg.) ; LOVAS, R. G. (Hrsg.) ; RÖSCH, F. (Hrsg.): *Handbook of Nuclear Chemistry*. Springer Verlag, 2011
- [Wiese u. Demonic 1992] WIESE, H. ; DEMONIC, M.: Operation of the Pamela high-level waste vitrification facility. In: *Nuclear Engineering and Design* 137 (1992), S. 147–151
- [Witherspoon u. Bodvarsson 2006] WITHERSPOON, P.A. (Hrsg.) ; BODVARSSON, G. S. (Hrsg.): *Geological Challenges in Radioactive Waste Isolation - Fourth Worldwide Review*. United States Department of Energy, 2006

- [Yesilyurt u. a. 2011] YESILYURT, G. ; CLARNO, K. T. ; GAULD, I. C.: Modular ORIGEN-S For Multi-Physics Code Systems. In: *International Conference on Mathematics and Computational Methods Applied to Nuclear Science and Engineering*, 2011



## Zusammenfassung

Der Einsatz von Kernbrennstoffen für die Energieerzeugung bedingt die Erzeugung von radioaktiven Abfallstoffen. Diese Abfallstoffe entstehen bei allen Handhabungen innerhalb des nuklearen Brennstoffkreislaufs. Der Hauptanteil der Radiotoxizität entsteht während der Nutzung des Brennstoffs im Kernreaktor. Durch induzierte Spaltreaktionen wird Energie freigesetzt. Teile der entstehenden Spaltprodukte weisen eine hohe Radiotoxizität auf. Durch Neutroneneinfang im Brennstoff kommt es zu einer zusätzlichen Erhöhung. Die entstehenden Abfallströme aus dem Kernbrennstoffkreislauf müssen in einer sicheren Weise von der Biosphäre getrennt bleiben, um eine schädigende Wirkung auf Bevölkerung und Umwelt zu verhindern. Für die Endlagerung müssen diese Abfälle in einer geeigneten Weise verarbeitet und konditioniert werden. Die hierbei erzeugten Abfallprodukte müssen von unabhängiger Seite begutachtet werden, um ihre Eignung für den Transport und die Zwischen- bzw. Endlagerung sicherzustellen. Die unabhängige Produktkontrolle ist eine maßgebliche Komponente eines wirksamen Abfall-Management-Systems.

Das Ziel der Arbeit ist die Entwicklung eines Softwaresystems für die Begutachtung von radioaktiven Abfällen. Die Software soll die Gutachter in die Lage versetzen, mittels Szenario-Analysen Prognosen der Eigenschaften eines Abfallstroms zu ermitteln und darauf aufbauend die notwendigen Prüfmaßnahmen im Vorfeld einer Kampagne zu planen. Die Software wird als modulare Bibliothek entwickelt, dies ermöglicht die flexible Nutzung der Softwarekomponenten und einen hohen Wiederverwendungsgrad. Sie dient zur Kopplung von etablierten und validierten Simulationsprogrammen. Die Ergebnisse aus Monte-Carlo-Simulationen und Abbrandrechnungen werden automatisiert verarbeitet und dem Benutzer zur Verfügung gestellt. Die Anwendung von Simulationsprogrammen stellt besondere Anforderungen an die Infrastruktur. Die Szenario-Analysen bedingen eine Vielzahl von Parametervariationen, welche sich in der Rechenzeit bemerkbar machen. Aus diesem Grund wird parallel zur Softwareentwicklung der Aufbau und die Einrichtung eines Computer-Clusters vorangetrieben, welcher auf die Anforderungen der Simulationsprogramme zugeschnitten ist.

Um die Genauigkeit der entwickelten Softwarekomponenten zu prüfen, wurden Vergleichsrechnungen mit internationalen Benchmarks durchgeführt. Die ausgeführten Rechnungen und die anschließende Analyse mit dem Kopplungsprogramm belegen, dass die Ergebnisse der veröffentlichten Studien und die neu erstellen Berechnungen sich decken. Diese Benchmarks dienen dazu, dass grundlegende Verhalten der Software zu analysieren. Um die Software für die Eignung als Mittel der Produktkontrolle radioaktiver Abfallprodukte zu überprüfen, wurden anhand der zur Verfügung stehenden Begleitdokumentationen der hochaktiven Glasgebinde der Verglasungseinrichtung in Karlsruhe (VEK) die Ergebnisse der Software mit den deklarierten Produkteigenschaften verglichen. Sowohl die thermische Leistung als auch die Dosisleistung der Abfallgebinde wurden mittels Modellen berechnet. Hierbei zeigte sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den deklarierten und prognostizierten Produkteigenschaften. Aus diesem Benchmark konnte bereits geschlossen werden, dass die entwickelte Softwareumgebung ein belastbares Analysetool für die Gutachter von radioaktiven Abfallprodukten darstellt.

Die entwickelte Software dient der Szenario-Analyse von Abfallprodukten. Diese wird am Beispiel der hochdruck-kompaktierten Wiederaufarbeitungsabfälle genutzt, um Erwartungswerte für diesen Abfallstrom zu ermitteln. Dazu wurde auf Basis der Grundfunktionalität der Software eine Szenario-Analyse einer Wiederaufarbeitungsanlage entwickelt. Diese Analyse beinhaltet die Stoffströme und Materialbilanzen aller Verarbeitungsschritte. Die Prozessparameter, welche die Materialbilanzen beeinflussen, wurden aus öffentlichen Quellen zusammengetragen. Die ermittelten Produkteigenschaften für die freigegebenen Rohabfalleigenschaften weisen auf die Gültigkeit der derzeit vorliegenden Freigabe des Abfallstroms hin. Abschließend wurde die Analyse erweitert auf Rohabfalleigenschaften, welche in der derzeitigen Freigabe nicht enthalten sind, wie Hochabbbrand oder Mischoxidbrennstoffe. Diese Fälle wurden separat behandelt und mögliche Konflikte mit der derzeitigen Freigabe besprochen.

In dieser Arbeit wurde basierend auf validierten und weltweit akzeptierten numerischen Simulationscodes eine Softwareplattform für die Produktkontrolle von radioaktiven Abfällen geschaffen. Es wurde eine Softwareumgebung entwickelt, deren Ergebnisse zeigen, dass bereits in der Testphase belastbare Aussagen über die Einhaltung von Produkteigenschaften erzielt werden können. Daher ist davon auszugehen, dass die Software in Zukunft einen wichtigen Beitrag für die unabhängige Produktkontrolle liefern wird.

## Abstract

The usage of fissile material for nuclear fuel causes that alongside radioactive wastes are produced. These waste materials are created during all handling or usage operations within the nuclear fuel cycle. The main source of radiotoxicity is produced during the usage of nuclear fuel within the reactor. Energy is released by neutron induced fission reactions in heavy isotopes. Parts of the created fission products have large radiotoxicities. Due to neutron capture within the nuclear fuel the radiotoxicity is furthermore increased. These waste streams from the nuclear fuel cycle must be stored in a safe way to prevent any contamination of the biosphere and any harm to the civilization or the environment. The waste packages must be treated and conditioned for the final disposal. These created packages are subject to an independent product control to ensure their acceptability for transport, interim and final storage. The independent product control is a significant component of an effective waste management system.

The aim of this work is the development of a software system used for the assessment of radioactive waste packages. The software shall permit the auditor to perform scenario analysis to forecast the product properties of a certain waste stream and therefore optimize the needed inspection scope in preparation of a new campaign. The software is designed as a modular library this permits the most flexible use of the software components and a high reusability of written analysis software. The software system is used for coupling of established and well-known simulation programs used for nuclear systems. The results of Monte-Carlo simulations and burn-up calculations are automatically imported and prepared for user interaction. The usage of simulation programs cause different challenges to the computing infrastructure. The scenario analyses need a large number of parameter variations which are bound to the computing time. For this reason additional to the development of the software system the construction and implementation of a computer cluster was promoted. The design of this system was optimized on the requirements of the simulation programs. This system is used as a platform for future extensions and use cases.

To verify the accurateness of the developed software-components several comparative cal-

culations with international benchmarks were performed. The performed calculations and the additional analysis with the created software system show that the results of the benchmarks and the calculations match. These calculations were used to verify the basic quality of the software system. To verify that the software system is capable to be used as a tool for the inspection of radioactive waste products the product properties of the high level glass products from the vitrification plant in Karlsruhe (VEK) were calculated from the available compound documentations. The thermal power as well as the dose-rate for the compounds were calculated using different models. This analysis showed that the calculated and declared product properties are in a good agreement. It was concluded from this benchmark that the created software system is reliable to be used as a tool for the evaluation of radioactive waste products.

The software is used for scenario analysis of waste products. This feature is used for the super-compacted metallic waste stream from the reprocessing plants to forecast their product properties. Therefore the basic functionalities of the developed software system were used to create a scenario analysis of the reprocessing plant. This virtual plant contains all necessary processing steps with their material flow and mass balance. The process parameters which affect the material flow were collected from public resources. The expected product properties depending on the approved raw waste are valid within the current approved waste product properties. Finally the scenario analysis was extended to test the validity of the current approved product properties for the super-compacted waste stream if the raw waste properties are extended for high burn-up or mixed oxide fuels. These cases are treated separately and discussed in comparison with the current approval of the waste product properties.

The approach to implement a software platform for the analysis of radioactive waste products based on top of world-wide accepted and well-known tools was demonstrated in this work. The results of the created software system show that already during the testing phase reliable forecasts about the product properties were achieved. It is assumed that this software system will play a vital role for the product control.

## Danksagung

Die vorliegende Arbeit entstand am Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK-6) der Forschungszentrum Jülich GmbH.

Herrn Prof. Dr. Odoj danke ich für sein Interesse, sein Engagement und seinen wertvollen Hinweisen zu dieser Arbeit.

Bei Herrn Prof. Dr. Bruno Thomauske bedanke ich mich für die Übernahme des Koreferats. Mein Dank gilt unserem Institutsdirektor Prof. Dr. Dirk Bosbach für seine Unterstützung, insbesondere für die Bereitstellung der Rechnerinfrastruktur, ohne die diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

Den Mitarbeitern des IEK-6 und der Produktkontrollstelle gilt mein besonderer Dank. Besonders möchte ich meinem Betreuer Dr. Holger Tietze-Jaensch für seine Ratschläge und meine Einarbeitung in das Thema danken. Ebenfalls danke ich Dr. Thorsten Steinhardt, der meine Einarbeitung begleitete. Claudia Ruhnau möchte ich für Ihre Unterstützung in organisatorischen und verwaltungstechnischen Angelegenheiten danken. Dr. Yuliya Aksytina, Marc Weidenfeld, Ferdinand Kreutz, Eric Harren und Ivan Fast danke ich für die vielen unschätzbaren Kommentare und Anregungen.

Ebenfalls gilt mein Dank unseren externen Partnern und Kollegen. Stellvertretend für die GNS möchte ich mich bei Dr. Willfried Kunz für sein Interesse an dieser Fragestellung bedanken. Für die Möglichkeit die entwickelten Modelle an realen Abfallgebinden zu evaluieren, gilt mein Dank den Mitarbeitern der WAK GmbH in Karlsruhe.

Mein abschließender Dank gilt den Kollegen aus Aachen, allen voran Stephan Rohmen, Klaus Biß und Oliver Schitthelm für die unzähligen Stunden zwischen MCNP, C++ und ROOT.





Band / Volume 220

**Machbarkeitsstudie zum Aufbau und Betrieb eines Prüfstandes für Antriebsstränge von Windenergieanlagen mit Getriebe im Leistungsbereich bis 15 MW am Standort Forschungszentrum Jülich**  
(2014), 72 pp  
ISBN: 978-3-89336-973-7

Band / Volume 221

**Phenotyping Nannochloropsis gaditana under different conditions in controlled photobioreactors in laboratory and upscaled photobioreactors in greenhouse**  
R. Braun (2014), III, 177 pp  
ISBN: 978-3-89336-975-1

Band / Volume 222

**Fundamental processes of plasma and reactive gas surface treatment for the recovery of hydrogen isotopes from carbon co-deposits in fusion devices**  
S. Möller (2014), 99 pp  
ISBN: 978-3-89336-977-5

Band / Volume 223

**Analyse der Lichtstreuung zur Textur-Optimierung von Zinkoxid-Frontkontakten für Silizium-Dünnschichtsolarzellen**  
G. Jost (2014), viii, 203 pp  
ISBN: 978-3-89336-978-2

Band / Volume 224

**Luftgestützte Messung von HOx-Radikalkonzentrationen mittels Laser-induzierter Fluoreszenz auf einem Zeppelin NT: Untersuchung der atmosphärischen Oxidationsstärke der unteren Troposphäre**  
S. Gomm (2014), 5, iii, 205 pp  
ISBN: 978-3-89336-981-2

Band / Volume 225

**Sorption, Transformation and Transport of Sulfadiazine in a loess and a sandy Soil**  
S. Sittig (2014), v, 121 pp  
ISBN: 978-3-89336-982-9

Band / Volume 226

**A Lagrangian transport core for the simulation of stratospheric trace species in a Chemistry Climate Model**  
C. M. Hoppe (2014), vi, 112 pp  
ISBN: 978-3-89336-984-3

Band / Volume 227

**Einfluss der Probengröße und der Kornorientierung auf die Lebensdauer einer polykristallinen Ni-Basislegierung bei LCF- Beanspruchung**

T. Seibel (2014), II, 131 pp

ISBN: 978-3-89336-986-7

Band / Volume 228

**Implementation of capillary electromigrative separation techniques coupled to mass spectrometry in forensic and biological science**

T. N. Posch (2014), 264 pp

ISBN: 978-3-89336-987-4

Band / Volume 229

**Mobile Messungen - Messung und Bewertung von Verkehrsemissionen**

C. Ehlers (2014), VII, 136 pp

ISBN: 978-3-89336-989-8

Band / Volume 230

**Data Processing and Trace Gas Retrievals for the GLORIA Limb Sounder**

T. Guggenmoser (2014), xi, 111, XXVI

ISBN: 978-3-89336-993-5

Band / Volume 231

**Assessment of Laser Induced Ablation Spectroscopy (LIAS) as a method for quantitative in situ surface diagnostic in plasma environments**

N. Gierse (2014), 199 pp

ISBN: 978-3-89336-994-2

Band / Volume 232

**Lattice-Boltzmann-Simulation in faserbasierten Mikrostrukturen**

J. P. Brinkmann (2014), viii, 129 pp

ISBN: 978-3-89336-995-9

Band / Volume 233

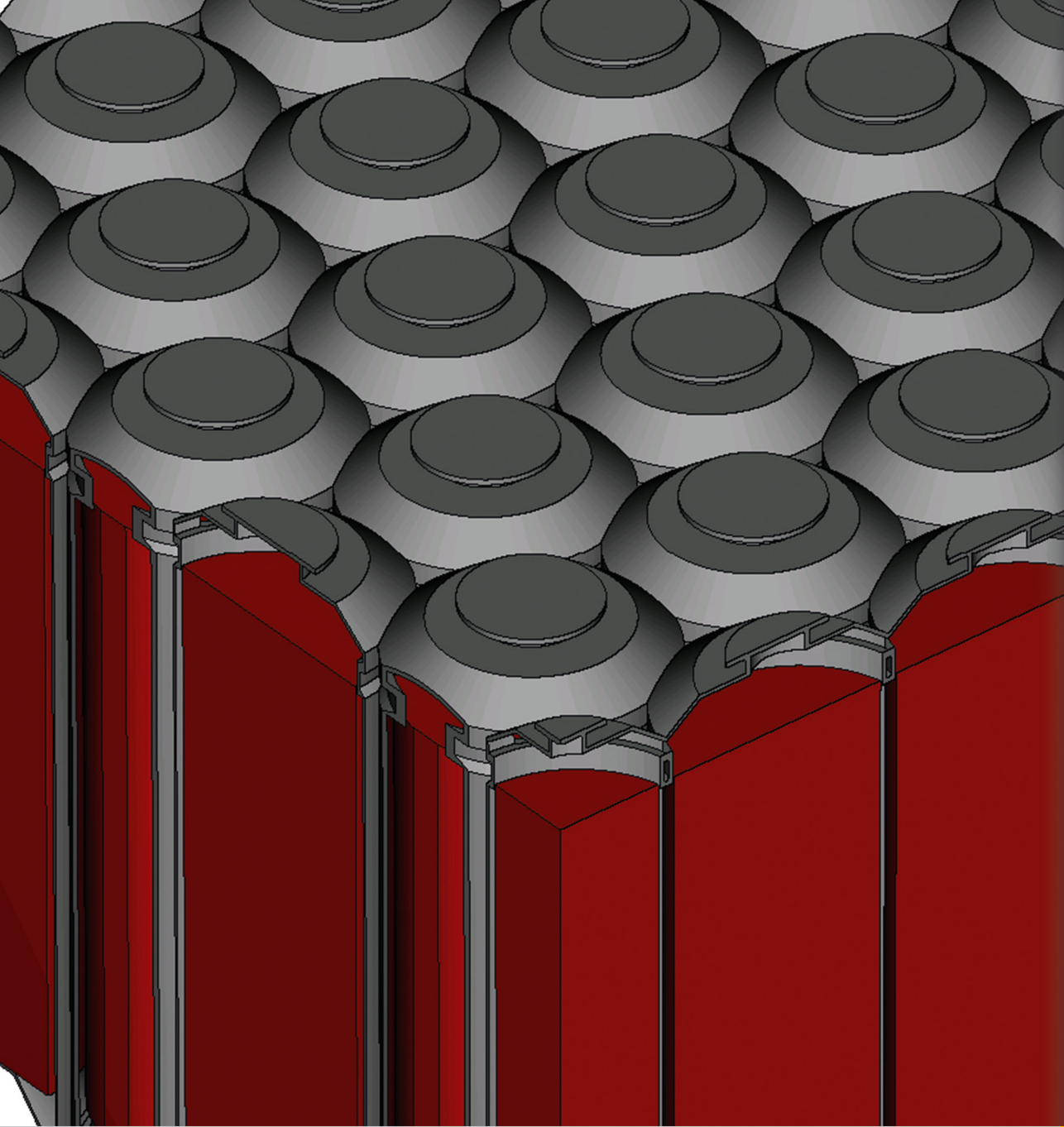
**Numerische Simulationen von Abfallgebinden aus der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen**

S. Schneider (2014), 201 pp

ISBN: 978-3-89336-998-0

Weitere **Schriften des Verlags im Forschungszentrum Jülich** unter  
<http://www.zwb1.fz-juelich.de/verlagextern1/index.asp>





**Energie & Umwelt / Energy & Environment**  
**Band / Volume 233**  
**ISBN 978-3-89336-998-0**